

# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS *mk*

## PCT

### NOTIFICATION D'ELECTION

(règle 61.2 du PCT)

Expéditeur: le BUREAU INTERNATIONAL

Destinataire:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C.20231  
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

en sa qualité d'office élu

Date d'expédition (jour/mois/année) 14 février 2000 (14.02.00)	
Demande internationale no PCT/FR99/01367	Référence du dossier du déposant ou du mandataire 4333/JPN
Date du dépôt international (jour-mois année) 09 juin 1999 (09.06.99)	Date de priorité (jour/mois/année) 12 juin 1998 (12.06.98)
Déposant ARGILLIER, Jean-François etc	

1. L'office désigné est avisé de son élection qui a été faite:

☒ dans la demande d'examen préliminaire international présentée à l'administration chargée de l'examen préliminaire international le:

08 janvier 2000 (08.01.00)

☐ dans une déclaration visant une élection ultérieure déposée auprès du Bureau international le:
2. L'élection ☒ a été faite
☐ n'a pas été faite

avant l'expiration d'un délai de 19 mois à compter de la date de priorité ou, lorsque la règle 32 s'applique, dans le délai visé à la règle 32.2b).

Bureau international de l'OMPI 34, chemin des Colombettes 1211 Genève 20, Suisse  no de télécopieur: (41-22) 740.14.35	Fonctionnaire autorisé  Christelle Croci  no de téléphone: (41-22) 338.83.38
--	--



RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

(article 18 et règles 43 et 44 du PCT)

Référence du dossier du déposant ou du mandataire <b>4333/JPN</b>	<b>POUR SUITE A DONNER</b> voir la notification de transmission du rapport de recherche internationale (formulaire PCT/ISA/220) et, le cas échéant, le point 5 ci-après	
Demande internationale n° <b>PCT/FR 99/ 01367</b>	Date du dépôt international(jour/mois/année) <b>09/06/1999</b>	(Date de priorité (la plus ancienne) (jour/mois/année) <b>12/06/1998</b>
Déposant  <b>INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE et al.</b>		

Le présent rapport de recherche internationale, établi par l'administration chargée de la recherche internationale, est transmis au déposant conformément à l'article 18. Une copie en est transmise au Bureau international.

Ce rapport de recherche internationale comprend 3 feuilles.

☒ Il est aussi accompagné d'une copie de chaque document relatif à l'état de la technique qui y est cité.

1. Base du rapport

- a. En ce qui concerne la **langue**, la recherche internationale a été effectuée sur la base de la demande internationale dans la langue dans laquelle elle a été déposée, sauf indication contraire donnée sous le même point.
- ☐ la recherche internationale a été effectuée sur la base d'une traduction de la demande internationale remise à l'administration.
- b. En ce qui concerne les **séquences de nucléotides ou d'acides aminés** divulguées dans la demande internationale (le cas échéant), la recherche internationale a été effectuée sur la base du listage des séquences :
- ☐ contenu dans la demande internationale, sous forme écrite.
- ☐ déposée avec la demande internationale, sous forme déchiffrable par ordinateur.
- ☐ remis ultérieurement à l'administration, sous forme écrite.
- ☐ remis ultérieurement à l'administration, sous forme déchiffrable par ordinateur.
- ☐ La déclaration, selon laquelle le listage des séquences présenté par écrit et fourni ultérieurement ne vas pas au-delà de la divulgation faite dans la demande telle que déposée, a été fournie.
- ☐ La déclaration, selon laquelle les informations enregistrées sous forme déchiffrable par ordinateur sont identiques à celles du listage des séquences présenté par écrit, a été fournie.

2. ☐ Il a été estimé que certaines revendications ne pouvaient pas faire l'objet d'une recherche (voir le cadre I).
3. ☐ Il y a absence d'unité de l'invention (voir le cadre II).

4. En ce qui concerne le **titre**,

- ☒ le texte est approuvé tel qu'il a été remis par le déposant.
- ☐ Le texte a été établi par l'administration et a la teneur suivante:

5. En ce qui concerne l'**abrégé**,

- ☒ le texte est approuvé tel qu'il a été remis par le déposant
- ☐ le texte (reproduit dans le cadre III) a été établi par l'administration conformément à la règle 38.2b). Le déposant peut présenter des observations à l'administration dans un délai d'un mois à compter de la date d'expédition du présent rapport de recherche internationale.

6. La figure **des dessins** à publier avec l'abrégé est la Figure n°

- ☒ suggérée par le déposant.
- ☐ parce que le déposant n'a pas suggéré de figure.
- ☐ parce que cette figure caractérise mieux l'invention.

1  
☐ Aucune des figures n'est à publier.

1961-1962



1

2

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Donde internationale No

PCT/FR 99/01367

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE  
CIB 6 C09K7/00 C09K7/02 C10M173/02

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

### B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A ÉTÉ FAITE

CIB 6 C09K C10M

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)

**C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS**

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		
Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	<p>DATABASE WPI  Section Ch, Week 9017  Derwent Publications Ltd., London, GB;  Class D23, AN 90-130964  XP002094473  &amp; SU 1 493 662 A (AS UZB CHEM INST)  , 15 juillet 1989  voir abrégé</p> <p>---</p>	1,4
Y	<p>US 4 359 393 A (R.J.STURWOLD)  16 novembre 1982  voir colonne 2, ligne 8 - colonne 3, ligne 25</p> <p>---</p>	1,3-5
Y	<p>GB 922 667 A (MASTER CHEMICAL CORP.)  3 avril 1963  voir page 2, ligne 4 - ligne 19  voir page 2, ligne 65 - page 3, ligne 3</p> <p>---</p> <p>-/--</p>	1,3-5

☒

Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒

Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

° Catégories spéciales de documents cités:

"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent

"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date

"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)

"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens

"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

"&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

4 août 1999

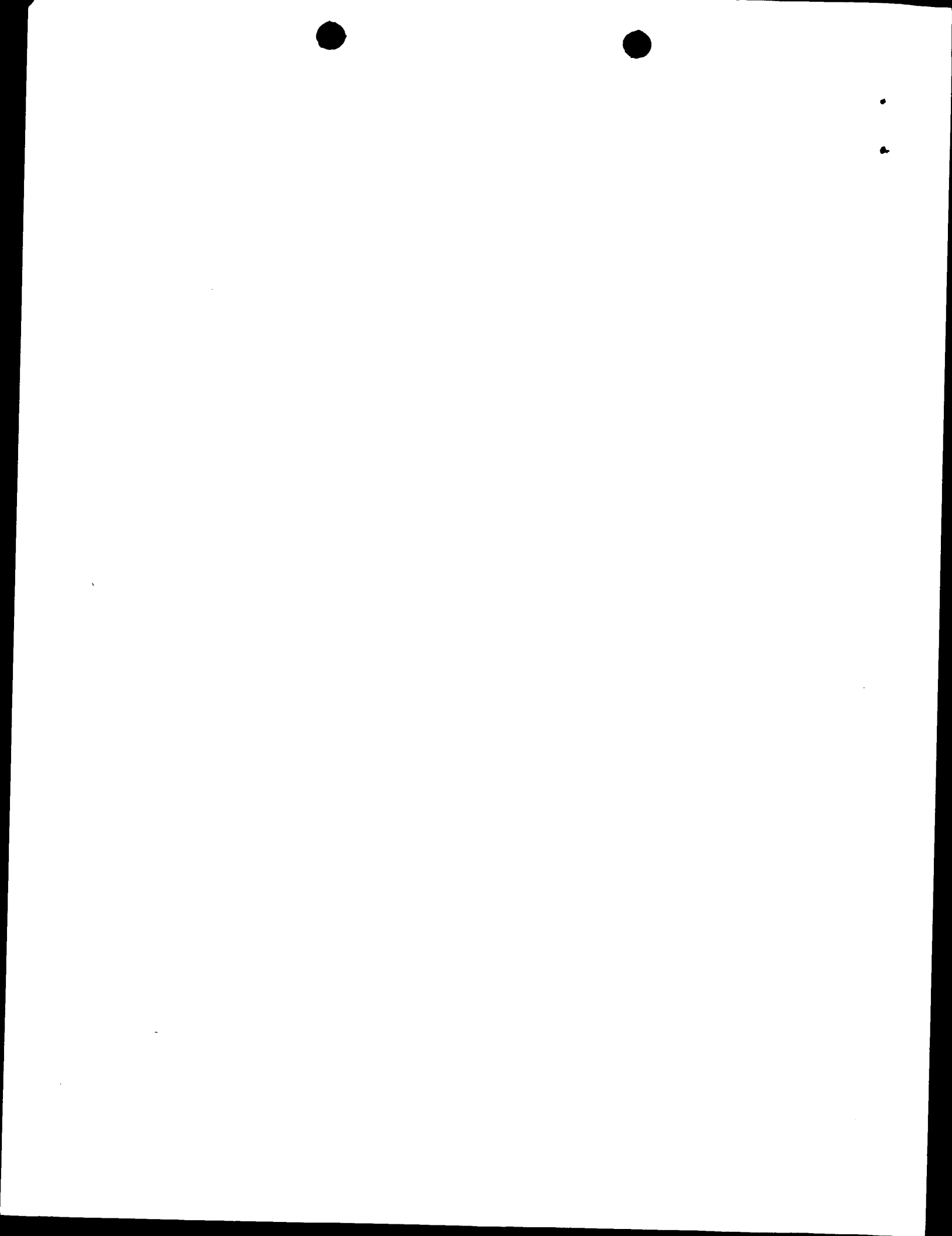
Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

12/08/1999

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale  
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tél. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

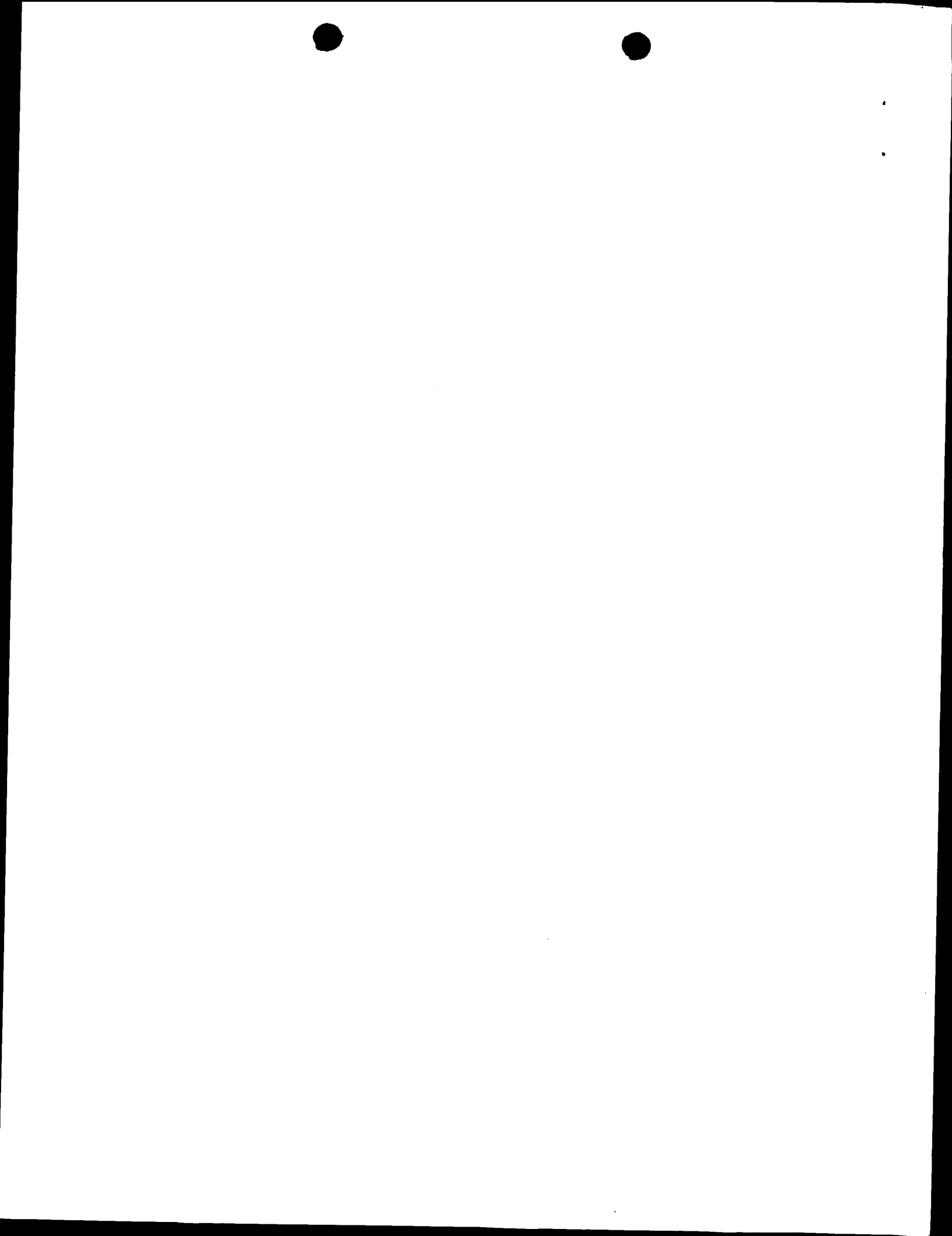
Fonctionnaire autorisé

Boulon, A



## C.(suite) DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	US 3 761 410 A (T.C.MONDSHINE) 25 septembre 1973 voir colonne 1, ligne 13 - ligne 23 voir colonne 3, ligne 38 - colonne 4, ligne 3 voir colonne 4, ligne 66 - colonne 5, ligne 9 voir colonne 5, ligne 49 - ligne 54 -----	1,2





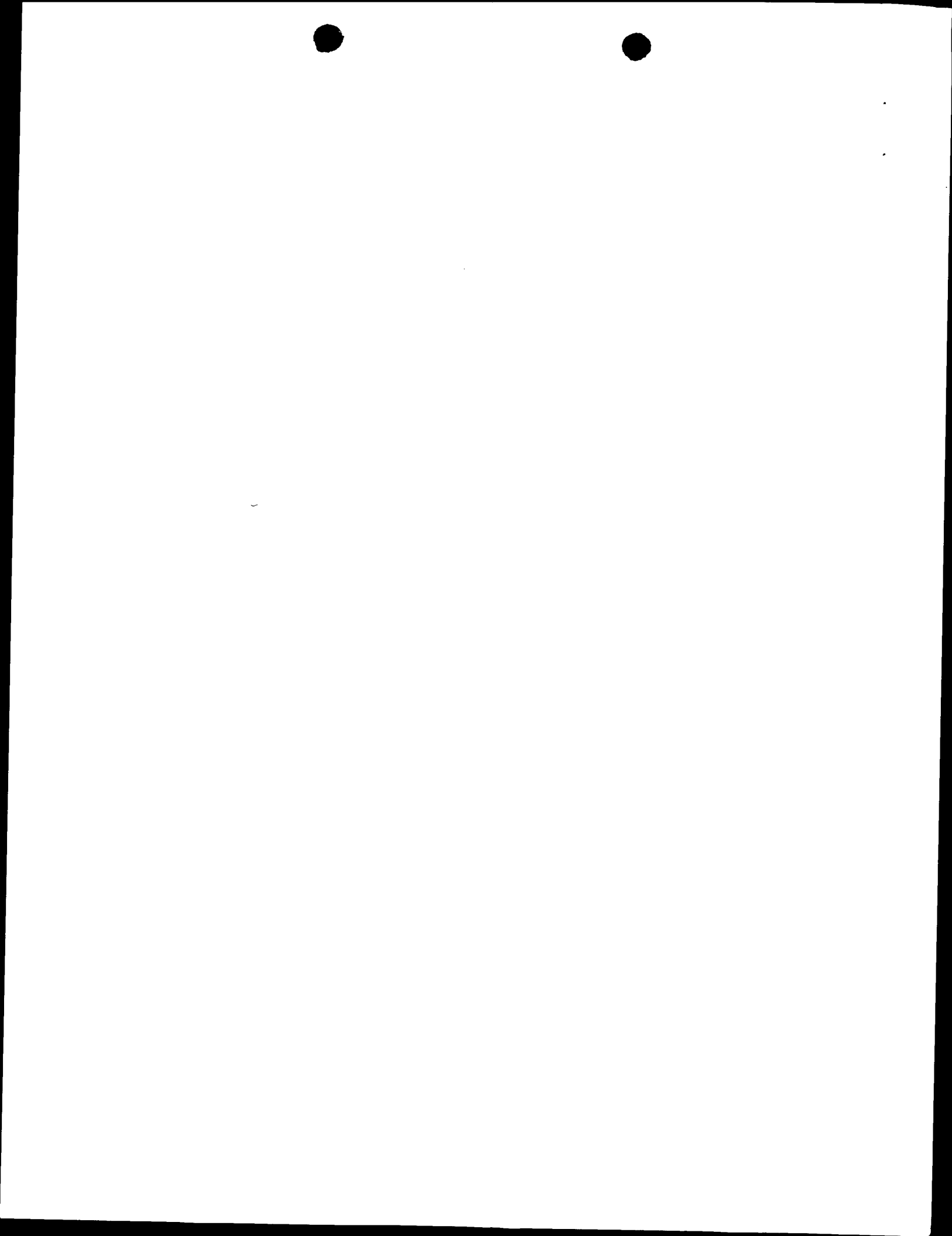
# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/FR 99/01367

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 4359393	A	16-11-1982	CA	1162529 A	21-02-1984
GB 922667	A		NL	133191 C	
			US	3186946 A	01-06-1965
US 3761410	A	25-09-1973	NONE		



# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

09/719352

Expéditeur : L'ADMINISTRATION CHARGEE DE  
LA RECHERCHE INTERNATIONALE

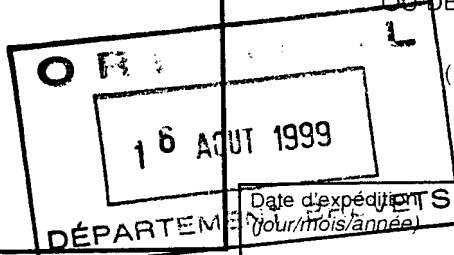
PCT

Destinataire

INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE  
Département Brevets  
A l'att. de ELMALEH, A.  
4, avenue de Bois Préau  
F-92852 Rueil-Malmaison  
FRANCE

NOTIFICATION DE TRANSMISSION DU  
RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE  
OU DE LA DECLARATION

(règle 44.1 du PCT)



Date d'expédition  
(jour/mois/année)

12/08/1999

Référence du dossier du déposant ou du mandataire

4333/JPN

POUR SUITE A DONNER

voir les paragraphes 1 et 4 ci-après

Demande internationale n°

PCT/FR 99/01367

Date du dépôt international

(jour/mois/année)

09/06/1999

Déposant

INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE et al.

1. ☒ Il est notifié au déposant que le rapport de recherche internationale a été établi et lui est transmis ci-joint.

**Dépôt de modifications et d'une déclaration selon l'article 19 :**

Le déposant peut, s'il le souhaite, modifier les revendications de la demande internationale (voir la règle 46):

**Quand?**

Le délai dans lequel les modifications doivent être déposées est de deux mois à compter de la date de transmission du rapport de recherche internationale ; pour plus de précisions, voir cependant les notes figurant sur la feuille d'accompagnement.

**Où?**

Directement auprès du Bureau international de l'OMPI  
34, chemin des Colombettes  
1211 Genève 20, Suisse  
n° de télécopieur: (41-22)740.14.35

**Pour des instructions plus détaillées,** voir les notes sur la feuille d'accompagnement.

2. ☐ Il est notifié au déposant qu'il ne sera pas établi de rapport de recherche internationale et la déclaration à cet effet, prévue à l'article 17.2(a), est transmise ci-joint.

3. ☐ **En ce qui concerne la réserve** pouvant être formulée, conformément à la règle 40.2, à l'égard du paiement d'une ou de plusieurs taxes additionnelles, il est notifié au déposant que

☐ la réserve ainsi que la décision y relative ont été transmises au Bureau international en même temps que la requête du déposant tendant à ce que le texte de la réserve et celui de la décision en question soient notifiés aux offices désignés.

☐ la réserve n'a encore fait l'objet d'aucune décision; dès qu'une décision aura été prise, le déposant en sera avisé.

4. **Mesure(s) consécutive(s) :** Il est rappelé au déposant ce qui suit:

Peu après l'expiration d'un délai de **18 mois** à compter de la date de priorité, la demande internationale sera publiée par le Bureau international. Si le déposant souhaite éviter ou différer la publication, il doit faire parvenir au Bureau international une déclaration de retrait de la demande internationale, ou de la revendication de priorité, conformément aux règles 90bis.1 et 90bis.3, respectivement, avant l'achèvement de la préparation technique de la publication internationale.

Dans un délai de **19 mois** à compter de la date de priorité, le déposant doit présenter la demande d'examen préliminaire international s'il souhaite que l'ouverture de la phase nationale soit reportée à 30 mois à compter de la date de priorité (ou même au-delà dans certains offices).

Dans un délai de **20 mois** à compter de la date de priorité, le déposant doit accomplir les démarches prescrites pour l'ouverture de la phase nationale auprès de tous les offices désignés qui n'ont pas été élus dans la demande d'examen préliminaire international ou dans une élection ultérieure avant l'expiration d'un délai de 19 mois à compter de la date de priorité ou qui ne pouvaient pas être élus parce qu'ils ne sont pas liés par le chapitre II.

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale



Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL-2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Alex Schmidt

1968-1969

## TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

## PCT

## RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

(article 18 et règles 43 et 44 du PCT)

Référence du dossier du déposant ou du mandataire <b>4333/JPN</b>	<b>POUR SUITE</b> voir la notification de transmission du rapport de recherche internationale (formulaire PCT/ISA/220) et, le cas échéant, le point 5 ci-après <b>A DONNER</b>	
Demande internationale n° <b>PCT/FR 99/ 01367</b>	Date du dépôt international (jour/mois/année) <b>09/06/1999</b>	(Date de priorité (la plus ancienne) (jour/mois/année)) <b>12/06/1998</b>
Déposant  <b>INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE et al.</b>		

Le présent rapport de recherche internationale, établi par l'administration chargée de la recherche internationale, est transmis au déposant conformément à l'article 18. Une copie en est transmise au Bureau international.

Ce rapport de recherche internationale comprend 3 feuilles.

☒ Il est aussi accompagné d'une copie de chaque document relatif à l'état de la technique qui y est cité.

## 1. Base du rapport

- a. En ce qui concerne la **langue**, la recherche internationale a été effectuée sur la base de la demande internationale dans la langue dans laquelle elle a été déposée, sauf indication contraire donnée sous le même point.
- ☐ la recherche internationale a été effectuée sur la base d'une traduction de la demande internationale remise à l'administration.
- b. En ce qui concerne les **séquences de nucléotides ou d'acides aminés** divulguées dans la demande internationale (le cas échéant), la recherche internationale a été effectuée sur la base du listage des séquences :
- ☐ contenu dans la demande internationale, sous forme écrite.
- ☐ déposée avec la demande internationale, sous forme déchiffrable par ordinateur.
- ☐ remis ultérieurement à l'administration, sous forme écrite.
- ☐ remis ultérieurement à l'administration, sous forme déchiffrable par ordinateur.
- ☐ La déclaration, selon laquelle le listage des séquences présenté par écrit et fourni ultérieurement ne vas pas au-delà de la divulgation faite dans la demande telle que déposée, a été fournie.
- ☐ La déclaration, selon laquelle les informations enregistrées sous forme déchiffrable par ordinateur sont identiques à celles du listage des séquences présenté par écrit, a été fournie.

2. ☐ Il a été estimé que certaines revendications ne pouvaient pas faire l'objet d'une recherche (voir le cadre I).

3. ☐ Il y a absence d'unité de l'invention (voir le cadre II).

## 4. En ce qui concerne le titre,

- ☒ le texte est approuvé tel qu'il a été remis par le déposant.
- ☐ Le texte a été établi par l'administration et a la teneur suivante:

## 5. En ce qui concerne l'abrégé,

- ☒ le texte est approuvé tel qu'il a été remis par le déposant
- ☐ le texte (reproduit dans le cadre III) a été établi par l'administration conformément à la règle 38.2b). Le déposant peut présenter des observations à l'administration dans un délai d'un mois à compter de la date d'expédition du présent rapport de recherche internationale.

## 6. La figure des dessins à publier avec l'abrégé est la Figure n°

- ☒ suggérée par le déposant.
- ☐ parce que le déposant n'a pas suggéré de figure.
- ☐ parce que cette figure caractérise mieux l'invention.

1

☐ Aucune des figures n'est à publier.

00000000



# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande Internationale No

PCT/FR 99/01367

<b>A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE</b> CIB 6    C09K7/00    C09K7/02    C10M173/02		
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB		
<b>B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE</b> Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement) CIB 6    C09K    C10M		
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche		
Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS</b>		
Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 9017 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D23, AN 90-130964 XP002094473 & SU 1 493 662 A (AS UZB CHEM INST) , 15 juillet 1989 voir abrégé	1,4
Y	US 4 359 393 A (R.J.STURWOLD) 16 novembre 1982 voir colonne 2, ligne 8 - colonne 3, ligne 25	1,3-5
Y	GB 922 667 A (MASTER CHEMICAL CORP.) 3 avril 1963 voir page 2, ligne 4 - ligne 19 voir page 2, ligne 65 - page 3, ligne 3	1,3-5
-/--		
<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <span><input checked="" type="checkbox"/> Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents</span> <span><input checked="" type="checkbox"/> Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe</span> </div>		
° Catégories spéciales de documents cités:		
<div style="display: flex;"> <div style="flex: 1;"> <p>"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent</p> <p>"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date</p> <p>"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)</p> <p>"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens</p> <p>"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée</p> </div> <div style="flex: 1;"> <p>"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention</p> <p>"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément</p> <p>"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier</p> <p>"&amp;" document qui fait partie de la même famille de brevets</p> </div> </div>		
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée  <div style="text-align: center; font-weight: bold;">4 août 1999</div>		Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale  <div style="text-align: center; font-weight: bold;">12/08/1999</div>
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Fonctionnaire autorisé  <div style="text-align: center; font-weight: bold;">Boulon, A</div>





## C.(suite) DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie	Identification des documents cités, avec le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	US 3 761 410 A (T.C.MONDSHINE) 25 septembre 1973 voir colonne 1, ligne 13 - ligne 23 voir colonne 3, ligne 38 - colonne 4, ligne 3 voir colonne 4, ligne 66 - colonne 5, ligne 9 voir colonne 5, ligne 49 - ligne 54 -----	1,2



# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande Internationale No

PCT/FR 99/01367

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 4359393 A	16-11-1982	CA 1162529 A	21-02-1984
GB 922667 A		NL 133191 C US 3186946 A	01-06-1965
US 3761410 A	25-09-1973	AUCUN	



## PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 4333/JPN	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/FR99/01367	International filing date (day/month/year) 09 June 1999 (09.06.99)	Priority date (day/month/year) 12 June 1998 (12.06.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C09K 7/00		
Applicant INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 7 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☒ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☒ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 08 January 2000 (08.01.00)	Date of completion of this report 02 October 2000 (02.10.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/FR99/01367

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1,3-13, as originally filed,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 pages 2, filed with the letter of 20 June 2000 (20.06.2000),  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the claims, Nos. 7-12, as originally filed,  
 Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 Nos. 1-6, filed with the letter of 20 June 2000 (20.06.2000),  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:





INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/FR99/01367

III. Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability

The questions whether the claimed invention appears to be novel, to involve an inventive step (to be non obvious), or to be industrially applicable have not been examined in respect of:

☐ the entire international application.

☒ claims Nos. 11,12.

because:

☐ the said international application, or the said claims Nos. \_\_\_\_\_  
relate to the following subject matter which does not require an international preliminary examination (*specify*):

☒ the description, claims or drawings (*indicate particular elements below*) or said claims Nos. 11,12  
are so unclear that no meaningful opinion could be formed (*specify*):

See separate sheet.

☐ the claims, or said claims Nos. \_\_\_\_\_ are so inadequately supported  
by the description that no meaningful opinion could be formed.

☐ no international search report has been established for said claims Nos. \_\_\_\_\_.



**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: III

The scope of Claim 11 and dependent Claim 12 is not clear because although the term "incorporates" indicates a process step, the technical features for controlling lubrication capacity are not apparent (PCT Article 6). Therefore, there is no opinion relating to the novelty, inventive step and industrially applicability of the subject matter of Claims 11 and 12.



**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	2, 10	YES
	Claims	1, 3-9	NO
Inventive step (IS)	Claims	2, 10	YES
	Claims	1, 3-9	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

Reference is made to the following documents:

D1: GB-A-922 667

D2: US-A-4 359 393

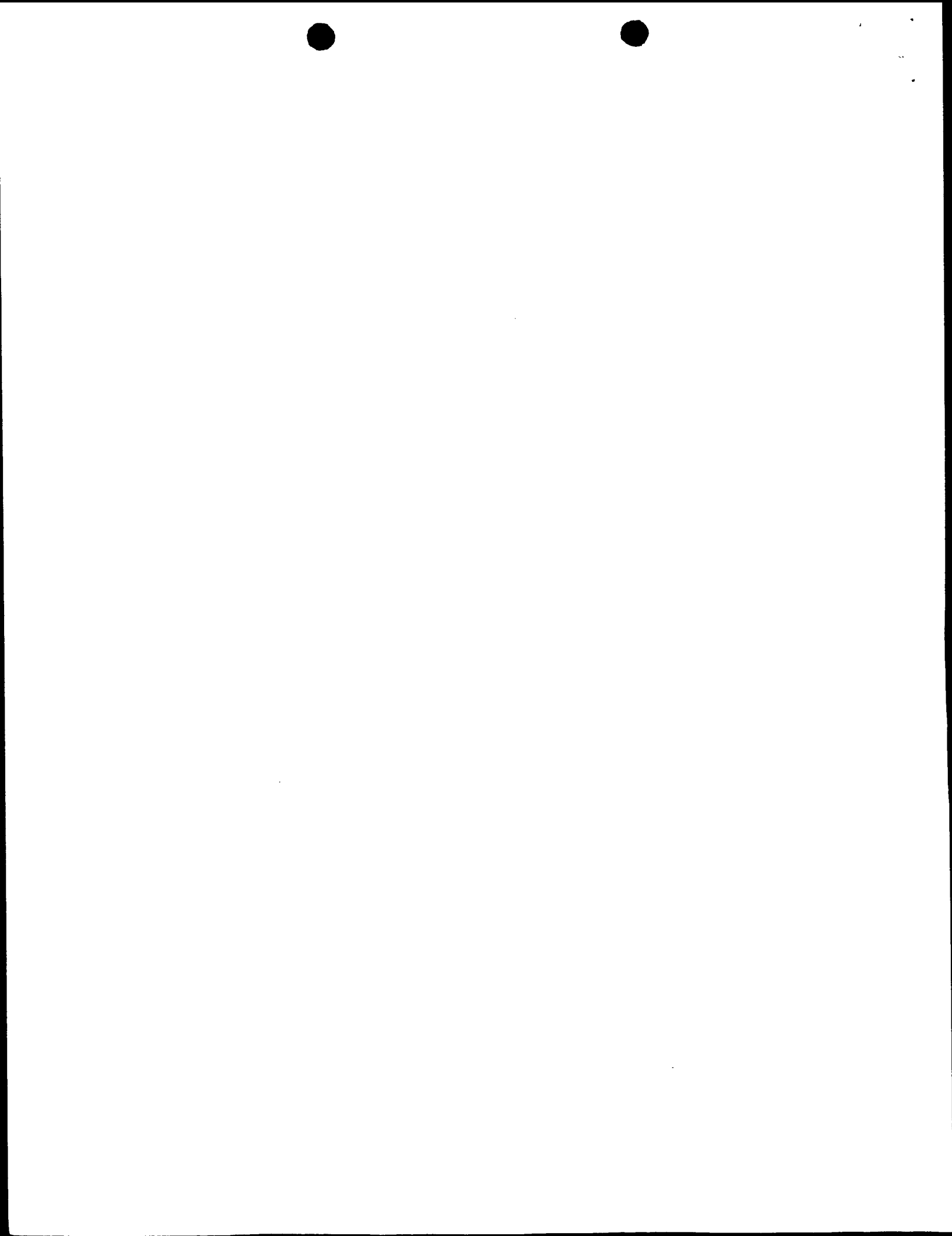
D3: Database WPI-Abstract 90-130964 & SU-A-1 493 662

D4: Translation of SU-A-1 493 662 (D3) (introduced by the applicant).

**1. Novelty:**

D4 describes an ionic and a non-ionic amphiphilic compound used in bore fluids and obtained, respectively, by reacting cotton seed oil with diethanolamine at 25°C for 10 minutes (Example 4) and by reacting cotton seed oil with monoethanolamine at reaction temperatures of 100°C and 120°C for 10 minutes, which are the process conditions required for obtaining a compound that has the desired "non-ionic amphiphilic" properties (Table 1, comparative examples on lines 13-14). Furthermore, concentrations in the region of 0.1-0.5% by weight of the compound obtained are described (Tables 4 and 6, %GE).

The scope of Claim 1, as written, is far too wide and the subject matter of the present application as claimed does not, therefore, differ from that of D4.



Consequently, the subject matter of **Claims 1 and 3-9** does not appear to be novel under the terms of PCT Article 33(2).

Nonetheless, in view of the content of document D4, it appears that the subject matter of **Claims 2 and 10**, which claim a specific group of vegetable oils and a fluid with a pH above 9, respectively, is novel under the terms of PCT Article 33(2).

Documents D1 and D2 do not appear to be relevant since they describe a compound obtained by reacting fatty acids with an aminoalcohol, and their use in cutting fluids and metal machining.

## 2. Inventive step:

In view of the above-raised objections relating to the lack of novelty, forming an opinion relating to the inventive step of Claims 1 and 3-9 appears to be superfluous (PCT Article 33(3)).

D4 is considered to be the closest prior art. With regard to assessing the inventive step of remaining Claims 2 and 10, the technical problem that the present application aims to solve is that of providing water-based bore fluids which maintain a good lubrication capacity after ageing and at a high pH value.

The difference between the subject matter of Claims 2 and 10 and D4 lies in the nature of the vegetable oil used and a bore fluid that has a pH above 9.

The present application shows that with bore fluid compositions with a pH above 9, and in the presence of a





non-ionic amphiphilic compound, lubrication capacity is improved (see table, page 12, line 15).

Document D4 mainly describes ionic amphiphilic compounds and shows that at temperatures  $\geq 100^{\circ}\text{C}$ , therefore, most probably in the presence of non-ionic amphiphilic compounds, the stability of clay suspensions decreases.

Therefore, incorporating a non-ionic amphiphilic compound obtained by reacting a vegetable oil, as claimed in Claim 2, with an aminoalcohol in bore fluids with a pH above 9, so as to maintain a good lubrication capacity, is not obvious for a person skilled in the art.

The subject matter of Claims 2 and 10 appears inventive under the terms of PCT Article 33(3).

### 3. Industrial applicability:

The subject matter of the present application as claimed (Claims 1 to 10) is industrially applicable.



**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. The term "etc...." used in the description is vague and does not clearly define the scope of the protection sought (PCT Article 6).
2. The unit used for the shearing yield value (Examples 3-4) should be expressed according to the SI system of units (PCT Rule 10.1).
3. Contrary to the requirements of PCT Rule 5.1 (a)(ii), the description does not indicate the relevant prior art disclosed in document D4, nor does it cite this document.



PCT

REQUETE

Le soussigné requiert que la présente demande internationale soit traitée conformément au Traité de coopération en matière de brevets.

Réservé à l'office récepteur

Demande internationale n°

Date du dépôt international

Nom de l'office récepteur et "Demande internationale PCT"

Référence du dossier du déposant ou du mandataire (facultatif)  
(12 caractères au maximum) 4333/JPN

**Cadre n° I TITRE DE L'INVENTION** FLUIDE DE Puits COMPORTANT UNE COMPOSITION LUBRIFIANTE  
- PROCEDE POUR CONTROLER LA LUBRIFICATION D'UN FLUIDE DE Puits - APPLICATION AUX  
FLUIDES A HAUT PH

**Cadre n° II DEPOSANT**

Nom et adresse : (Nom de famille suivi du prénom; pour une personne morale, désignation officielle complète. L'adresse doit comprendre le code postal et le nom du pays. Le pays de l'adresse indiquée dans ce cadre est l'Etat où le déposant a son domicile si aucun domicile n'est indiqué ci-dessous.)

INSTITUT FRANÇAIS DU PETROLE  
1 & 4 avenue de Bois Préau  
92852 RUEIL-MALMAISON CEDEX  
FRANCE

☐ Cette personne est aussi inventeur.

n° de téléphone

n° de télécopieur 01 47 52 62 72

n° de téléimprimeur 01 47 52 70 03

Nationalité (nom de l'Etat) :

FRANCE

Domicile (nom de l'Etat) :

FRANCE

Cette personne est déposant pour :

☐ tous les Etats désignés

☒ tous les Etats désignés sauf les Etats-Unis d'Amérique

☐ les Etats-Unis d'Amérique seulement

☐ les Etats indiqués dans le cadre supplémentaire

**Cadre n° III AUTRE(S) DEPOSANT(S) OU (AUTRE(S)) INVENTEUR(S)**

Nom et adresse : (Nom de famille suivi du prénom; pour une personne morale, désignation officielle complète. L'adresse doit comprendre le code postal et le nom du pays. Le pays de l'adresse indiquée dans ce cadre est l'Etat où le déposant a son domicile si aucun domicile n'est indiqué ci-dessous.)

FINA RESEARCH  
Zone Industrielle C  
7181 Seneffe (Feluy)  
BELGIQUE

Cette personne est :

☒ déposant seulement

☐ déposant et inventeur

☐ inventeur seulement  
(Si cette case est cochée, ne pas remplir la suite.)

Nationalité (nom de l'Etat) :

BELGIQUE

Domicile (nom de l'Etat) :

BELGIQUE

Cette personne est déposant pour :

☐ tous les Etats désignés

☒ tous les Etats désignés sauf les Etats-Unis d'Amérique

☐ les Etats-Unis d'Amérique seulement

☐ les Etats indiqués dans le cadre supplémentaire

☐ D'autres déposants ou inventeurs sont indiqués sur une feuille annexe.

**Cadre n° IV MANDATAIRE OU REPRESENTANT COMMUN; OU ADRESSE POUR LA CORRESPONDANCE**

La personne dont l'identité est donnée ci-dessous est/ a été désignée pour agir au nom du ou des déposants auprès des autorités internationales compétentes, comme:

☐ mandataire

☒ représentant commun

Nom et adresse : (Nom de famille suivi du prénom; pour une personne morale, désignation officielle complète. L'adresse doit comprendre le code postal et le nom du pays.)

INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE  
1 & 4, Avenue de Bois Préau  
92852 RUEIL MALMAISON CEDEX FRANCE

n° de téléphone

01 47 52 62 72

n° de télécopieur 01 47 52 70 03

n° de téléimprimeur

☐ Adresse pour la correspondance : cocher cette case lorsque aucun mandataire ni représentant commun n'est/n'a été désigné et que l'espace ci-dessus est utilisé pour indiquer une adresse spéciale à laquelle la correspondance doit être envoyée.

Approved

## Suite du cadre n° III AUTRE(S) DEPOSANT(S) OU (AUTRE(S)) INVENTEUR(S)

*Si aucun des sous-cadres suivants n'est utilisé, cette feuille ne doit pas être incluse dans la requête.*

Nom et adresse : (Nom de famille suivi du prénom; pour une personne morale, désignation officielle complète. L'adresse doit comprendre le code postal et le nom du pays. Le pays de l'adresse indiquée dans ce cadre est l'Etat où le déposant a son domicile si aucun domicile n'est indiqué ci-dessous.)

ARGILLIER Jean-François  
4 square de l'Hippodrome  
92210 SAINT-CLOUD  
FRANCE

Cette personne est :

- ☐ déposant seulement  
☒ déposant et inventeur  
☐ inventeur seulement  
(Si cette case est cochée, ne pas remplir la suite.)

Nationalité (nom de l'Etat) : FRANCE

Domicile (nom de l'Etat) : FRANCE

Cette personne est déposant pour :

- ☐ tous les Etats désignés ☐ tous les Etats désignés sauf les Etats-Unis d'Amérique ☒ les Etats-Unis d'Amérique seulement ☐ les Etats indiqués dans le cadre supplémentaire

Nom et adresse : (Nom de famille suivi du prénom; pour une personne morale, désignation officielle complète. L'adresse doit comprendre le code postal et le nom du pays. Le pays de l'adresse indiquée dans ce cadre est l'Etat où le déposant a son domicile si aucun domicile n'est indiqué ci-dessous.)

DEMOULIN André  
1 rue de Pymont  
5998 BEAUVÉCHAIN  
BELGIQUE

Cette personne est :

- ☐ déposant seulement  
☒ déposant et inventeur  
☐ inventeur seulement  
(Si cette case est cochée, ne pas remplir la suite.)

Nationalité (nom de l'Etat) : BELGIQUE

Domicile (nom de l'Etat) : BELGIQUE

Cette personne est déposant pour :

- ☐ tous les Etats désignés ☐ tous les Etats désignés sauf les Etats-Unis d'Amérique ☒ les Etats-Unis d'Amérique seulement ☐ les Etats indiqués dans le cadre supplémentaire

Nom et adresse : (Nom de famille suivi du prénom; pour une personne morale, désignation officielle complète. L'adresse doit comprendre le code postal et le nom du pays. Le pays de l'adresse indiquée dans ce cadre est l'Etat où le déposant a son domicile si aucun domicile n'est indiqué ci-dessous.)

AUDIBERT-HAYET Annie  
10 Place Blanche de Castille  
78290 CROISSY SUR SEINE  
FRANCE

Cette personne est :

- ☐ déposant seulement  
☒ déposant et inventeur  
☐ inventeur seulement  
(Si cette case est cochée, ne pas remplir la suite.)

Nationalité (nom de l'Etat) : FRANCE

Domicile (nom de l'Etat) : FRANCE

Cette personne est déposant pour :

- ☐ tous les Etats désignés ☐ tous les Etats désignés sauf les Etats-Unis d'Amérique ☒ les Etats-Unis d'Amérique seulement ☐ les Etats indiqués dans le cadre supplémentaire

Nom et adresse : (Nom de famille suivi du prénom; pour une personne morale, désignation officielle complète. L'adresse doit comprendre le code postal et le nom du pays. Le pays de l'adresse indiquée dans ce cadre est l'Etat où le déposant a son domicile si aucun domicile n'est indiqué ci-dessous.)

JANSSEN Michel  
59 avenue de la forêt  
1970 WEZEMBEEK-OPPEM  
BELGIQUE

Cette personne est :

- ☐ déposant seulement  
☒ déposant et inventeur  
☐ inventeur seulement  
(Si cette case est cochée, ne pas remplir la suite.)

Nationalité (nom de l'Etat) :

BELGIQUE

Domicile (nom de l'Etat) :

BELGIQUE

Cette personne est déposant pour :

- ☐ tous les Etats désignés ☐ tous les Etats désignés sauf les Etats-Unis d'Amérique ☒ les Etats-Unis d'Amérique seulement ☐ les Etats indiqués dans le cadre supplémentaire

☐ D'autres déposants ou inventeurs sont indiqués sur une autre feuille annexe.





**Cadre n° V DESIGNATION D'ETATS**

Les désignations suivantes sont faites conformément à la règle 4.9.a) (cocher les cases appropriées; une au moins doit l'être) :

**Brevet régional**

- ☒ **AP Brevet ARIPO** : GH Ghana, GM Gambie, KE Kenya, LS Lesotho, MW Malawi, SD Soudan, SZ Swaziland, UG Ouganda, ZW Zimbabwe et tout autre Etat qui est un Etat contractant du Protocole de Harare et du PCT
- ☒ **EA Brevet eurasien** : AM Arménie, AZ Azerbaïdjan, BY Bélarus, KG Kirghizistan, KZ Kazakhstan, MD République de Moldova, RU Fédération de Russie, TJ Tadjikistan, TM Turkménistan et tout autre Etat qui est un Etat contractant de la Convention sur le brevet eurasien et du PCT
- ☒ **EP Brevet européen** : AT Autriche, BE Belgique, CH et LI Suisse et Liechtenstein, CY Chypre, DE Allemagne, DK Danemark, ES Espagne, FI Finlande, FR France, GB Royaume-Uni, GR Grèce, IE Irlande, IT Italie, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Pays-Bas, PT Portugal, SE Suède et tout autre Etat qui est un Etat contractant de la Convention sur le brevet européen et du PCT
- ☒ **OA Brevet OAPI** : BF Burkina Faso, BJ Bénin, CF République centrafricaine, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, CM Cameroun, GA Gabon, GN Guinée, ML Mali, MR Mauritanie, NE Niger, SN Sénégal, TD Tchad, TG Togo et tout autre Etat qui est un Etat membre de l'OAPI et un Etat contractant du PCT (si une autre forme de protection ou de traitement est souhaitée, le préciser sur la ligne pointillée)

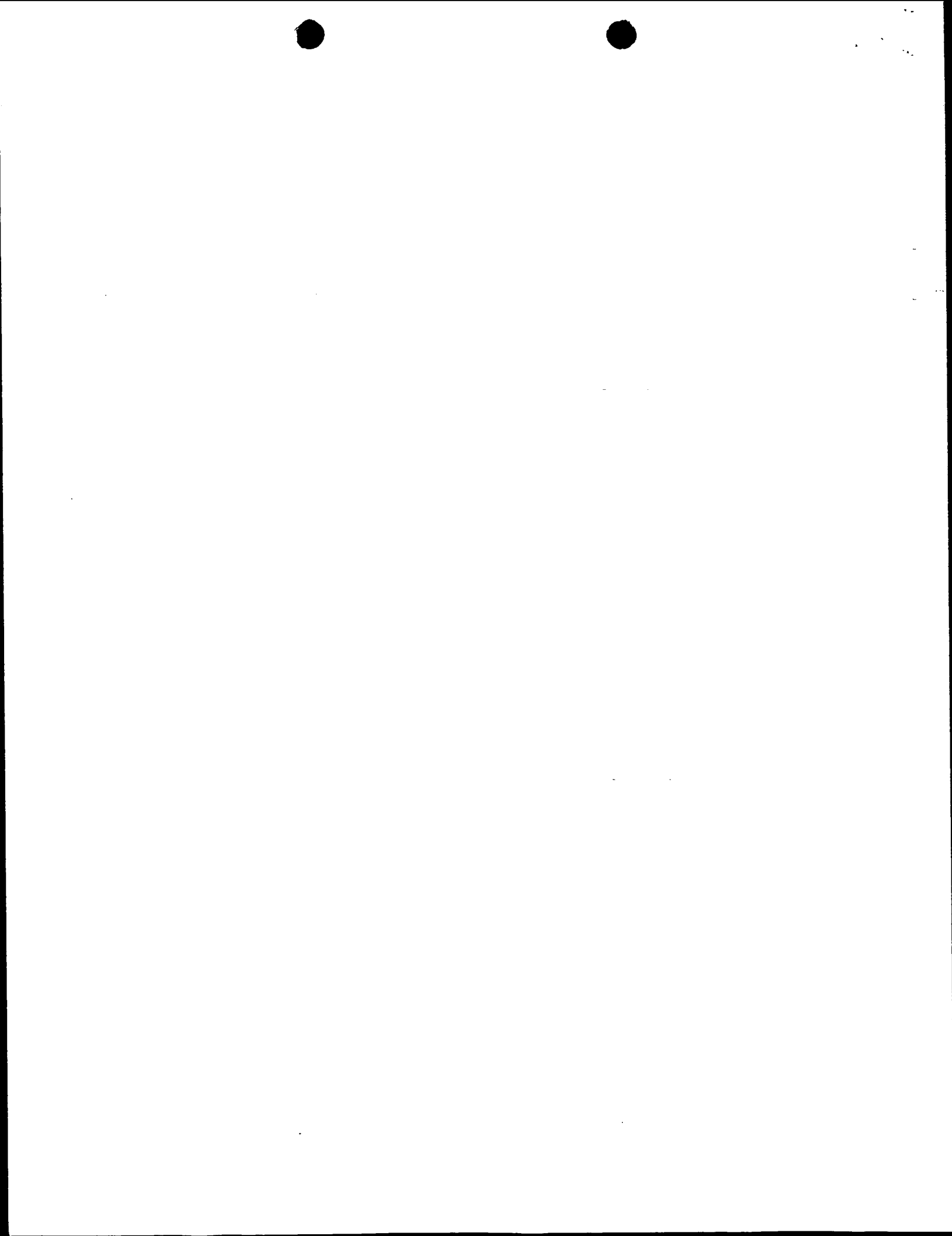
**Brevet national** (si une autre forme de protection ou de traitement est souhaitée, le préciser sur la ligne pointillée) :

- |   |  |
|---|--|
| <input checked="" type="checkbox"/> AL Albanie                                    | <input checked="" type="checkbox"/> LS Lesotho                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> AM Arménie                                    | <input checked="" type="checkbox"/> LT Lituanie                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> AT Autriche                                   | <input checked="" type="checkbox"/> LU Luxembourg                            |
| <input checked="" type="checkbox"/> AU Australie                                  | <input checked="" type="checkbox"/> LV Lettonie                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> AZ Azerbaïdjan                                | <input checked="" type="checkbox"/> MD République de Moldova                 |
| <input checked="" type="checkbox"/> BA Bosnie-Herzégovine                         | <input checked="" type="checkbox"/> MG Madagascar                            |
| <input checked="" type="checkbox"/> BB Barbade                                    | <input checked="" type="checkbox"/> MK Ex-République yougoslave de Macédoine |
| <input checked="" type="checkbox"/> BG Bulgarie                                   | <input checked="" type="checkbox"/> MN Mongolie                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> BR Brésil                                     | <input checked="" type="checkbox"/> MW Malawi                                |
| <input checked="" type="checkbox"/> BY Bélarus                                    | <input checked="" type="checkbox"/> MX Mexique                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> CA Canada                                     | <input checked="" type="checkbox"/> NO Norvège                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> CH et LI Suisse et Liechtenstein              | <input checked="" type="checkbox"/> NZ Nouvelle-Zélande                      |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN Chine                                      | <input checked="" type="checkbox"/> PL Pologne                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> CU Cuba                                       | <input checked="" type="checkbox"/> PT Portugal                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> CZ République tchèque                         | <input checked="" type="checkbox"/> RO Roumanie                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> DE Allemagne                                  | <input checked="" type="checkbox"/> RU Fédération de Russie                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> DK Danemark                                   | <input checked="" type="checkbox"/> SD Soudan                                |
| <input checked="" type="checkbox"/> EE Estonie                                    | <input checked="" type="checkbox"/> SE Suède                                 |
| <input checked="" type="checkbox"/> ES Espagne                                    | <input checked="" type="checkbox"/> SG Singapour                             |
| <input checked="" type="checkbox"/> FI Finlande                                   | <input checked="" type="checkbox"/> SI Slovénie                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> GB Royaume-Uni                                | <input checked="" type="checkbox"/> SK Slovaquie                             |
| <input checked="" type="checkbox"/> GE Géorgie                                    | <input checked="" type="checkbox"/> SL Sierra Leone                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> GH Ghana                                      | <input checked="" type="checkbox"/> TJ Tadjikistan                           |
| <input checked="" type="checkbox"/> GM Gambie                                     | <input checked="" type="checkbox"/> TM Turkménistan                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> GW Guinée-Bissau                              | <input checked="" type="checkbox"/> TR Turquie                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> HR Croatie                                    | <input checked="" type="checkbox"/> TT Trinité-et-Tobago                     |
| <input checked="" type="checkbox"/> HU Hongrie                                    | <input checked="" type="checkbox"/> UA Ukraine                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> ID Indonésie                                  | <input checked="" type="checkbox"/> UG Ouganda                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> IL Israël                                     | <input checked="" type="checkbox"/> US Etats-Unis d'Amérique                 |
| <input checked="" type="checkbox"/> IS Islande                                    | <input checked="" type="checkbox"/> UZ Ouzbékistan                           |
| <input checked="" type="checkbox"/> JP Japon                                      | <input checked="" type="checkbox"/> VN Viet Nam                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> KE Kenya                                      | <input checked="" type="checkbox"/> YU Yougoslavie                           |
| <input checked="" type="checkbox"/> KG Kirghizistan                               | <input checked="" type="checkbox"/> ZW Zimbabwe                              |
| <input checked="" type="checkbox"/> KP République populaire démocratique de Corée |  |
| <input checked="" type="checkbox"/> KR République de Corée                        |  |
| <input checked="" type="checkbox"/> KZ Kazakhstan                                 |  |
| <input checked="" type="checkbox"/> LC Sainte-Lucie                               |  |
| <input checked="" type="checkbox"/> LK Sri Lanka                                  |  |
| <input checked="" type="checkbox"/> LR Libéria                                    |  |

Cases réservées pour la désignation (aux fins d'un brevet national) d'Etats qui sont devenus parties au PCT après la publication de la présente feuille :

☐ .....  
☐ .....

**Déclaration concernant les désignations de précaution** : outre les désignations faites ci-dessus, le déposant fait aussi conformément à la règle 4.9.b) toutes les désignations qui seraient autorisées en vertu du PCT, à l'exception de toute désignation indiquée dans le cadre supplémentaire comme étant exclue de la portée de cette déclaration. Le déposant déclare que ces désignations additionnelles sont faites sous réserve de confirmation et que toute désignation qui n'est pas confirmée avant l'expiration d'un délai de 15 mois à compter de la date de priorité doit être considérée comme retirée par le déposant à l'expiration de ce délai. (Pour confirmer une désignation, il faut déposer une déclaration contenant la désignation en question et payer les taxes de désignation et de confirmation. La confirmation doit parvenir à l'office récepteur dans le délai de 15 mois.)




Cadre n° VI REVENDEICATION DE PRIORITE		<input type="checkbox"/> D'autres revendications de priorité sont indiquées dans le cadre supplémentaire.		
Date de dépôt de la demande antérieure (jour/mois/année)	Numéro de la demande antérieure	Lorsque la demande antérieure est une :		
		demande nationale : pays	demande régionale : * office régional	demande internationale : office récepteur
(1) FRANCE	12 juin 1998 (12/06/98)	98/07.969		
(2)				
(3)				

☒ L'office récepteur est prié de préparer et de transmettre au Bureau international une copie certifiée conforme de la ou des demandes antérieures (seulement si la demande antérieure a été déposée auprès de l'office qui, aux fins de la présente demande internationale, est l'office récepteur) indiquées ci-dessus au(x) point(s) : 98/07.969

\* Si la demande antérieure est une demande ARIPO, il est obligatoire d'indiquer dans le cadre supplémentaire au moins un pays partie à la Convention de Paris pour la protection de la propriété industrielle pour lequel cette demande antérieure a été déposée (règle 4.10.b)ii). Voir le cadre supplémentaire.

Cadre n° VII ADMINISTRATION CHARGÉE DE LA RECHERCHE INTERNATIONALE			
<b>Choix de l'administration chargée de la recherche internationale (ISA)</b> (si plusieurs administrations chargées de la recherche internationale sont compétentes pour procéder à la recherche internationale, indiquer l'administration choisie; le code à deux lettres peut être utilisé) : ISA /	<b>Demande d'utilisation des résultats d'une recherche antérieure; mention de cette recherche</b> (si une recherche antérieure a été effectuée par l'administration chargée de la recherche internationale ou demandée à cette dernière) : Date (jour/mois/année)      Numéro      Pays (ou office régional) 23 Février 1999      FA 559061      FRANCE		

Cadre n° VIII BORDEREAU; LANGUE DE DEPOT	
La présente demande internationale contient le nombre de feuilles suivant :  requête : 4 description (sauf partie réservée au listage des séquences) : 13 revendications : 2 abrégé : 1 dessins : partie de la description réservée au listage des séquences :  Nombre total de feuilles : 20	Le ou les éléments cochés ci-après sont joints à la présente demande internationale : 1. <input checked="" type="checkbox"/> feuille de calcul des taxes 2. <input type="checkbox"/> pouvoir distinct signé 3. <input checked="" type="checkbox"/> copie du pouvoir général; numéro de référence, le cas échéant : 4. <input type="checkbox"/> explication de l'absence d'une signature 5. <input type="checkbox"/> document(s) de priorité indiqué(s) dans le cadre n° VI au(x) point(s) : 6. <input type="checkbox"/> traduction de la demande internationale en (langue) : 7. <input type="checkbox"/> indications séparées concernant des micro-organismes ou autre matériel biologique déposés 8. <input type="checkbox"/> listage des séquences de nucléotides ou d'acides aminés sous forme déchiffable par ordinateur 9. <input checked="" type="checkbox"/> autres éléments (préciser) : copie Rapport de Recherche Français
Figure des dessins qui doit accompagner l'abrégé : 1	Langue de dépôt de la demande internationale :

Cadre n° IX SIGNATURE DU DEPOSANT OU DU MANDATAIRE	
A côté de chaque signature, indiquer le nom du signataire et, si cela n'apparaît pas clairement à la lecture de la requête, à quel titre l'intéressé signe.  <div style="text-align: right; margin-right: 100px;">             INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE                 Alfred ELMALEH              Chef du Département Brevets           </div>	

Réservé à l'office récepteur

1. Date effective de réception des pièces supposées constituer la demande internationale :	2. Dessins : <input type="checkbox"/> reçus :  <input type="checkbox"/> non reçus :
3. Date effective de réception, rectifiée en raison de la réception ultérieure, mais dans les délais, de documents ou de dessins complétant ce qui est supposé constituer la demande internationale :	
4. Date de réception, dans les délais, des corrections demandées selon l'article 11.2) du PCT :	
5. Administration chargée de la recherche internationale (si plusieurs sont compétentes) : ISA /	6. <input type="checkbox"/> Transmission de la copie de recherche différée jusqu'au paiement de la taxe de recherche.

Réservé au Bureau international

Date de réception de l'exemplaire original par le Bureau international :



RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL

(article 36 et règle 70 du PCT)



Référence du dossier du déposant ou du mandataire 4333/JPN	<b>POUR SUITE A DONNER</b> voir la notification de transmission du rapport d'examen préliminaire international (formulaire PCT/IPEA/416)	
Demande internationale n° PCT/FR99/01367	Date du dépôt international (jour/mois/année) 09/06/1999	Date de priorité (jour/mois/année) 12/06/1998
Classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois classification nationale et CIB C09K7/00		
Déposant INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE et al.		

- Le présent rapport d'examen préliminaire international, établi par l'administration chargée de l'examen préliminaire international, est transmis au déposant conformément à l'article 36.
- Ce RAPPORT comprend 7 feuilles, y compris la présente feuille de couverture.
  - ☒ Il est accompagné d'ANNEXES, c'est-à-dire de feuilles de la description, des revendications ou des dessins qui ont été modifiées et qui servent de base au présent rapport ou de feuilles contenant des rectifications faites auprès de l'administration chargée de l'examen préliminaire international (voir la règle 70.16 et l'instruction 607 des Instructions administratives du PCT).

Ces annexes comprennent 2 feuilles.

- Le présent rapport contient des indications relatives aux points suivants:

- I ☒ Base du rapport
- II ☐ Priorité
- III ☒ Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle
- IV ☐ Absence d'unité de l'invention
- V ☒ Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration
- VI ☐ Certains documents cités
- VII ☐ Irrégularités dans la demande internationale
- VIII ☒ Observations relatives à la demande internationale

Date de présentation de la demande d'examen préliminaire internationale 08/01/2000	Date d'achèvement du présent rapport 02. 10. 00
Nom et adresse postale de l'administration chargée de l'examen préliminaire international:  Office européen des brevets D-80298 Munich Tél. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Fonctionnaire autorisé Scheuer, S N° de téléphone +49 89 2399 8321 

8 4 2 2 1 0 0 0

**RAPPORT D'EXAMEN  
PRELIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/FR99/01367

**I. Base du rapport**

1. Ce rapport a été rédigé sur la base des éléments ci-après *(les feuilles de remplacement qui ont été remises à l'office récepteur en réponse à une invitation faite conformément à l'article 14 sont considérées, dans le présent rapport, comme "initialement déposées" et ne sont pas jointes en annexe au rapport puisqu'elles ne contiennent pas de modifications.)* :

**Description, pages:**

1,3-13	version initiale		
2	reçue(s) le	23/06/2000	avec la lettre du 20/06/2000

**Revendications, N°:**

7-12	version initiale		
1-6	reçue(s) le	23/06/2000	avec la lettre du 20/06/2000

**2. Les modifications ont entraîné l'annulation :**

- ☐ de la description, pages :
- ☐ des revendications, n°s :
- ☐ des dessins, feuilles :

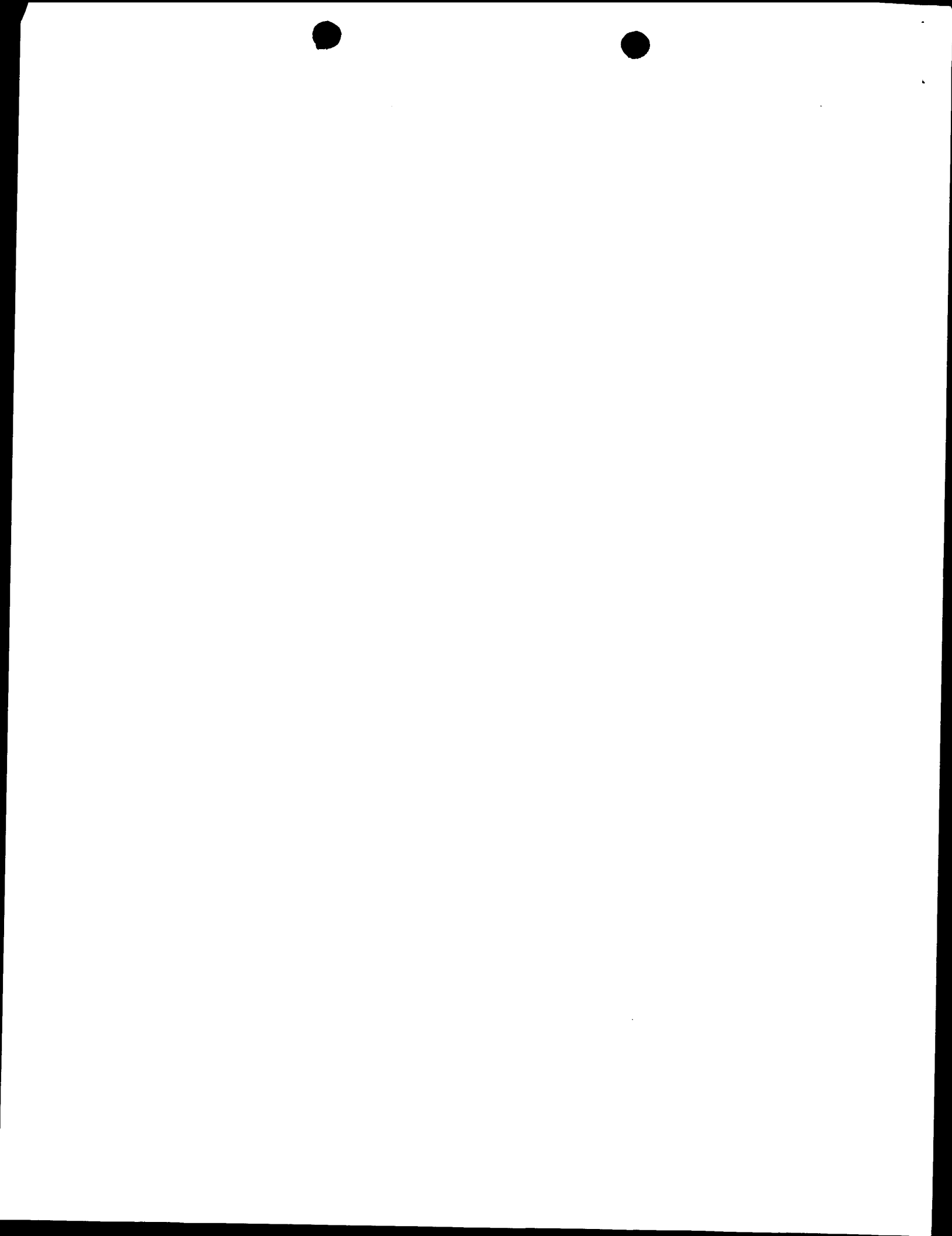
3. ☐ Le présent rapport a été formulé abstraction faite (de certaines) des modifications, qui ont été considérées comme allant au-delà de l'exposé de l'invention tel qu'il a été déposé, comme il est indiqué ci-après (règle 70.2(c)) :

**4. Observations complémentaires, le cas échéant :**

**III. Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle**

La question de savoir si l'objet de l'invention revendiquée semble être nouveau, impliquer une activité inventive (ne pas être évident) ou être susceptible d'application industrielle n'a pas été examinée pour ce qui concerne :

- ☐ l'ensemble de la demande internationale.
- ☒ les revendications n°s 11, 12.





**RAPPORT D'EXAMEN  
PRELIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/FR99/01367

parce que :

- ☐ la demande internationale, ou les revendications n°s en question, se rapportent à l'objet suivant, à l'égard duquel l'administration chargée de l'examen préliminaire international n'est pas tenue d'effectuer un examen préliminaire international (*préciser*) :
- ☒ la description, les revendications ou les dessins (*en indiquer les éléments ci-dessous*), ou les revendications n°s 11,12 en question ne sont pas claires, de sorte qu'il n'est pas possible de formuler une opinion valable (*préciser*) :  
**voir feuille séparée**
- ☐ les revendications, ou les revendications n°s en question, ne se fondent pas de façon adéquate sur la description, de sorte qu'il n'est pas possible de formuler une opinion valable.
- ☐ il n'a pas été établi de rapport de recherche internationale pour les revendications n°s en question.

**V. Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

**1. Déclaration**

Nouveauté	Oui : Revendications 2,10 Non : Revendications 1,3-9
Activité inventive	Oui : Revendications 2,10 Non : Revendications 1,3-9
Possibilité d'application industrielle	Oui : Revendications 1-10 Non : Revendications

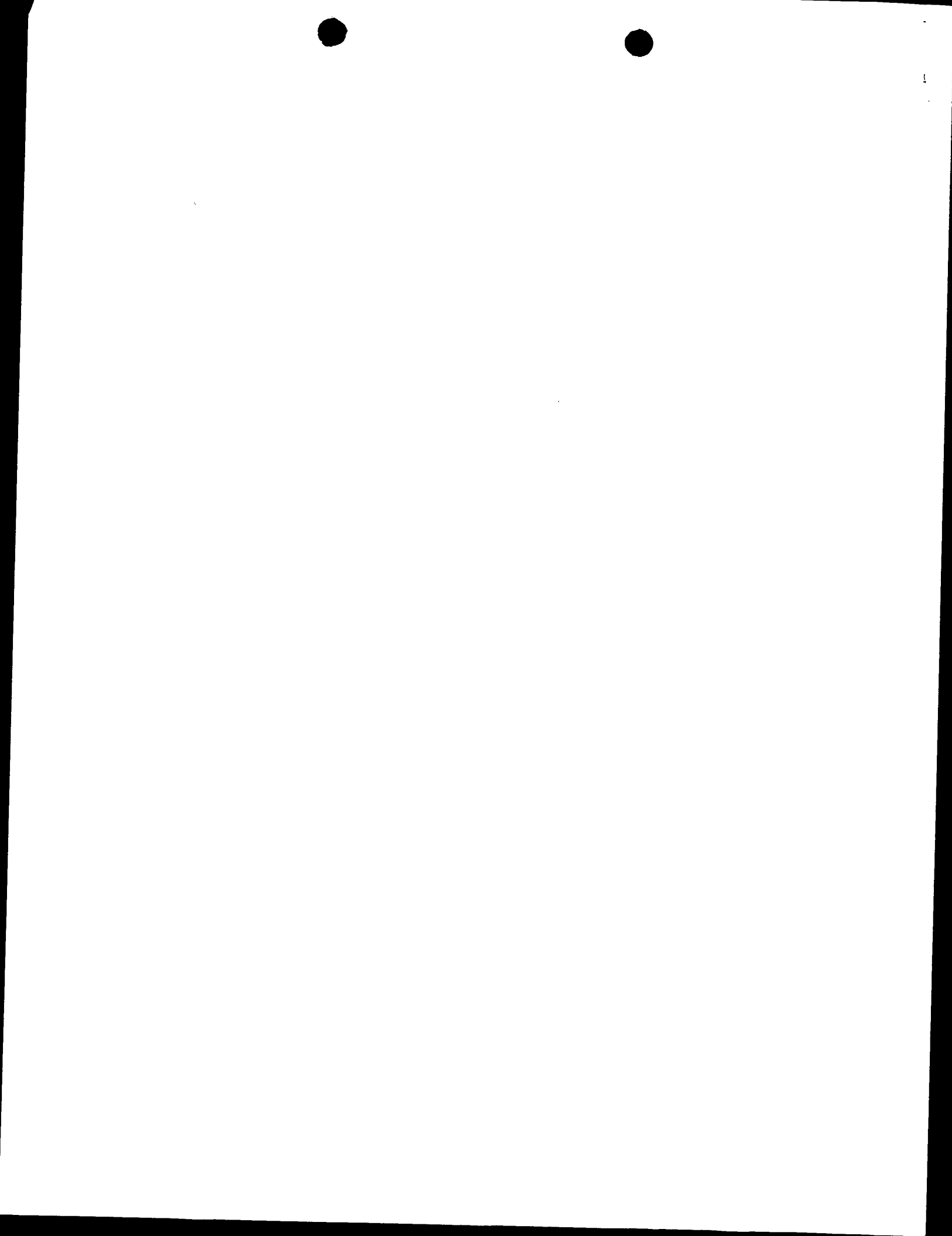
**2. Citations et explications**

**voir feuille séparée**

**VIII. Observations relatives à la demande internationale**

Les observations suivantes sont faites au sujet de la clarté des revendications, de la description et des dessins et de la question de savoir si les revendications se fondent entièrement sur la description :

**voir feuille séparée**



**Concernant le point III**

**Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle**

La portée de la revendication 11 et de la revendication dépendante 12, n'est pas claire car bien que le terme "incorpore" indique une étape de procédé, les caractéristiques techniques qui permettent un contrôle du pouvoir lubrifiant ne sont pas apparentes (Article 6 PCT).

De ce fait une opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle pour l'objet des revendications 11 et 12 n'est pas formulée.

**Concernant le point V**

**Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

Il est fait référence aux documents suivants:

D1: GB-A-922667

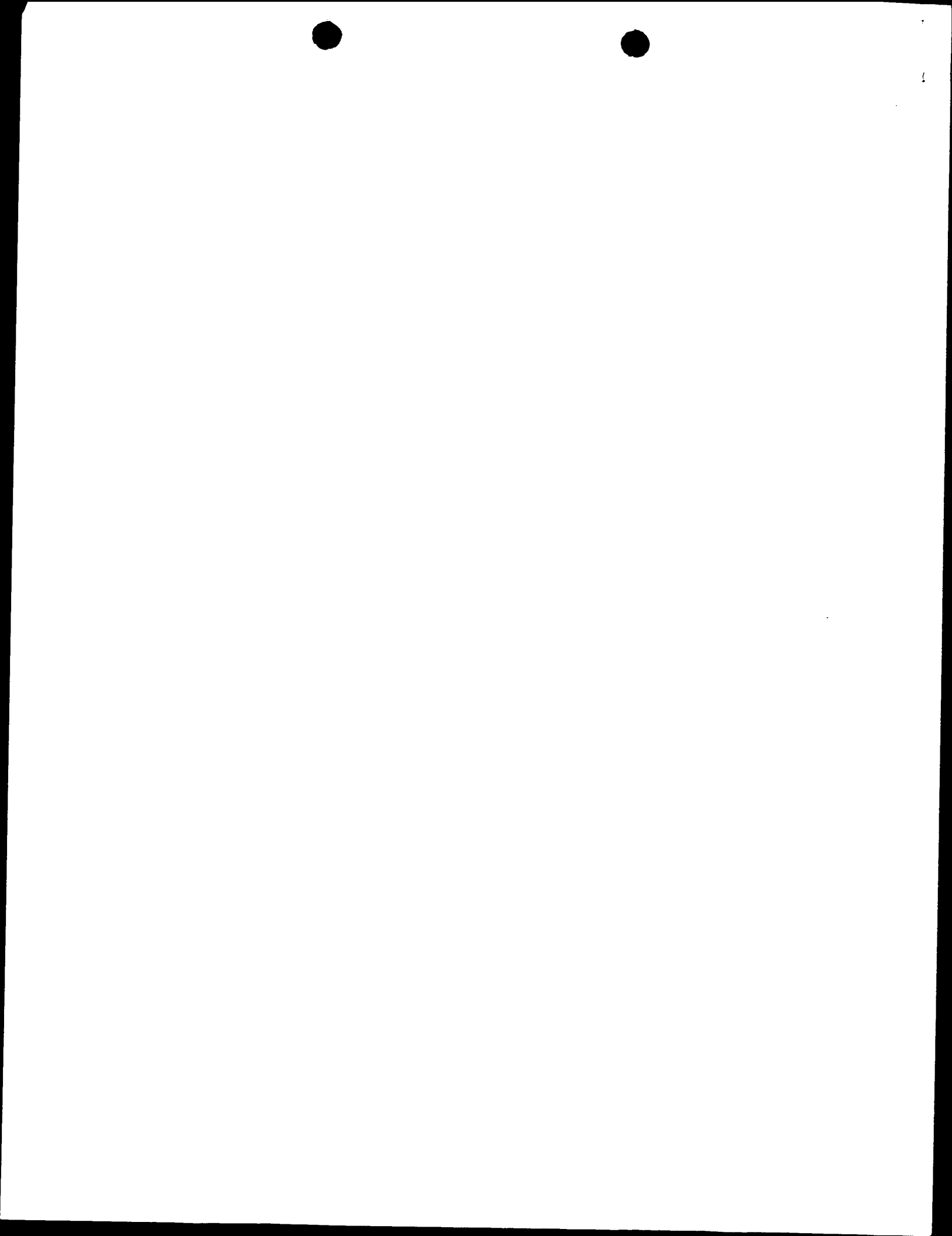
D2: US-A-4359393

D3: Database WPI-Abstract 90-130964 & SU-A-1493662

D4: Traduction de SU-A-1493662 (D3) (introduite par le Demandeur)

**1. Nouveauté:**

**D4** décrit un composé **amphiphile ionique et non-ionique** utilisé dans les fluides pour le forage et issu respectivement d'une part de la réaction d'huile de graines de cotonnier avec la diéthanolamine à 25°C pendant 10 minutes (Exemple 4) et d'autre part de la réaction d'huile de graines de cotonnier avec la monoéthanolamine à **des températures de réaction de 100°C et 120°C** pendant 10 minutes qui sont des conditions opératoires permettant l'obtention d'un composé ayant les propriétés recherchées "amphiphile non-ionique" (Tableau 1, Exemples comparatifs lignes 13-14). De plus des concentrations de l'ordre de 0.1-0.5% en poids en composé obtenu sont



décrites (tableaux 4 et 6, %GE).

Telle que formulée, la portée de la revendication 1 est beaucoup trop large et de ce fait l'objet de la présente application tel que revendiqué ne diffère pas de celui de D4.

D'où l'objet des **revendications 1 et 3-9 n'apparaît pas nouveau** au sens de l'Article 33(2) PCT.

Toutefois il apparaît, au vu du contenu du document D4, que l'objet des **revendications 2 et 10** revendiquant respectivement un groupe spécifique d'huiles végétales et un fluide à pH supérieur à 9, **est nouveau** au sens de l'Article 33(2) PCT.

Les documents D1 et D2 ne semblent pas pertinents, car il décrivent un composé obtenu par réaction d'acides gras avec un aminoalcool, et leur utilisation dans des fluides de coupe et d'usinage de métaux.

## **2. Activité Inventive:**

Au vu de l'objection soulevée ci-dessus quant à l'absence de nouveauté, une formulation d'opinion quant à l'activité inventive des revendications 1, 3-9 apparaît superfétatoire (Art.33(3) PCT).

D4 est considéré comme l'état de la technique le plus proche.

En ce qui concerne l'appréciation de l'activité inventive pour les revendications restantes 2 et 10, le problème à résoudre par la présente application est de fournir des fluides de puits à base d'eau qui après vieillissement et à pH élevé garde un bon pouvoir lubrifiant.

La différence entre l'objet des revendications 2 et 10 et D4 réside dans la nature de l'huile végétale utilisée et dans un fluide de puits ayant un pH supérieur à 9.

La présente application montre que pour des compositions de fluides de puits à pH supérieur à 9 et en présence d'un composé amphiphile non-ionique le pouvoir de lubrification est amélioré (voir tableau page 12 ligne 15).



Le document D4 décrit principalement des composés amphiphiles ioniques et montre qu'à des températures  $\geq 100^{\circ}\text{C}$ , donc très vraisemblablement en présence de composés amphiphiles non-ioniques la stabilité des suspensions argileuses décroît.

Par conséquent l'incorporation d'un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'une huile végétale, telle que revendiquée dans la revendication 2, avec un aminoalcool dans des fluides de puits à pH supérieur à 9, de telle sorte à garder un bon pouvoir lubrifiant, ne s'impose pas à l'évidence à l'homme du métier.

L'objet des **revendications 2 et 10 apparaît inventif** au sens de l'Article 33(3) PCT.

### **3. Application industrielle:**

L'objet de la présente application tel que revendiqué (rev. 1-10) est susceptible d'application industrielle.

#### **Concernant le point VIII**

#### **Observations relatives à la demande internationale**

1. Le terme "etc..." utilisé dans la description est vague et ne définit pas clairement l'étendue de la protection (Art.6 PCT).
2. L'unité pour la valeur de cisaillement YV (exemples 3-4) doit être exprimée selon le système SI (Règle 10.1 PCT).
3. Contrairement à ce qu'exige la règle 5.1 a) ii) PCT, la description n'indique pas l'état de la technique antérieure pertinent exposé dans le document D4 et ne cite pas ce document.





**RAPPORT D'EXAMEN**

Demande internationale n° PCT/FR99/01367

**PRELIMINAIRE INTERNATIONAL - FEUILLE SEPARÉE**

---



N° 23.06.00

en production. Pour ces opérations, le fluide de complétion peut être spécifique notamment à la roche réservoir et aux effluents produits. Les opérations de "workover" ou d'intervention consistent à travailler dans un puits producteur pour forer, reforer, nettoyer le puits, ou changer des  
5 équipements de puits.

Les fluides de puits doivent pouvoir avoir des caractéristiques ajustées en fonction des utilisations très variées, notamment leur viscosité, leur masse volumique ou leur capacité de contrôle du filtrat. Dans certains cas de puits très fortement déviés, par exemple des forages  
10 horizontaux, ou plus généralement des puits qui procurent des frottements importants sur les tubulaires descendus dans le puits, la capacité lubrifiante du fluide devient une caractéristique importante.

On utilise parfois des fluides à haut pH, c'est à dire supérieur à 9 et généralement supérieur à environ 10, par exemple les boues de forage à  
15 base de silicate telles celles décrites dans la publication SPE 37266 présentée à l'« International Symposium on Oilfield Chemistry, 18-21 February 1997, Houston TX ». Ces boues sont récemment utilisées notamment pour leur qualité d'inhibition du gonflement des argiles forées.

20

Ainsi, la présente invention concerne un fluide de puits à base d'eau qui comporte un composé lubrifiant comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale sur au moins un aminoalcool.

25

Toutes les huiles végétales peuvent convenir. L'huile végétale peut être choisie dans le groupe formé par l'huile de lin, de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, ou leur mélange.

Dans une variante, l'huile végétale peut être polymérisée et avoir après polymérisation une viscosité à 20°C comprise entre 5 et 60 Pa.s.

30

L' aminoalcool utilisé peut être la diéthanolamine.



N° 23 06 00

## REVENDICATIONS

5

1) Fluide de puits à base d'eau, caractérisé en ce qu'il comporte un composé lubrifiant comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale sur au moins un aminoalcool.

10

2) Fluide selon la revendication 1, caractérisé en ce que ladite huile végétale est choisie dans le groupe formé par l'huile de lin, de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, ou leur mélange.

15

3) Fluide selon l'une des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que ladite huile végétale est polymérisée et a une viscosité à 20°C comprise entre 5 et 60 Pa.s.

20

4) Fluide selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que ledit aminoalcool est la diéthanolamine.

25

5) Fluide selon l'une des revendication 1 à 4, caractérisé en ce que le composé lubrifiant est conditionné sous la forme d'un mélange comprenant au moins un solvant.

6) Fluide selon la revendication 5, caractérisé en ce que ledit solvant est un dérivé d'une huile végétale.



# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

09/719352

Expéditeur: L'ADMINISTRATION CHARGÉE DE L'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL

PCT

Destinataire:

ELMALEH, A.  
INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE  
Département Brevets  
1&4 Avenue de Bois Preau  
F-92852 Rueil-Malmaison  
FRANCE

- 4 OCT. 2000  
DÉPARTEMENT BREVETS

NOTIFICATION DE TRANSMISSION DU  
RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE  
INTERNATIONAL  
(règle 71.1 du PCT)

Date d'expédition  
(jour/mois/année)

02.10.00

Référence du dossier du déposant ou du mandataire  
4333/JPN

NOTIFICATION IMPORTANTE

Demande internationale No.  
PCT/FR99/01367

Date du dépôt international (jour/mois/année)  
09/06/1999

Date de priorité (jour/mois/année)  
12/06/1998

Déposant

INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE et al.

1. Il est notifié au déposant que l'administration chargée de l'examen préliminaire international a établi le rapport d'examen préliminaire international pour la demande internationale et le lui transmet ci-joint, accompagné, le cas échéant, de ces annexes.

2. Une copie du présent rapport et, le cas échéant, de ses annexes est transmise au Bureau international pour communication à tous les offices élus.

3. Si tel ou tel office élu l'exige, le Bureau international établira une traduction en langue anglaise du rapport (à l'exclusion des annexes de celui-ci) et la transmettra aux offices intéressés.

## 4. RAPPEL

Pour aborder la phase nationale auprès de chaque office élu, le déposant doit accomplir certains actes (dépôt de traduction et paiement des taxes nationales) dans le délai de 30 mois à compter de la date de priorité (ou plus tard pour ce qui concerne certains offices) (article 39.1) (voir aussi le rappel envoyé par le Bureau international dans le formulaire PCT/IB/301).

Lorsqu'une traduction de la demande internationale doit être remise à un office élu, elle doit comporter la traduction de toute annexe du rapport d'examen préliminaire international. Il appartient au déposant d'établir la traduction en question et de la remettre directement à chaque office élu intéressé.

Pour plus de précisions en ce qui concerne les délais applicables et les exigences des offices élus, voir le Volume II du Guide du déposant du PCT.

Nom et adresse postale de l'administration chargée de l'examen préliminaire international



Office européen des brevets  
D-80298 Munich  
Tél. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d  
Fax: +49 89 2399 - 4465

Fonctionnaire autorisé

Hardy Magliano, N

Tél. +49 89 2399-8151



848017100



719352

# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

## PCT

### RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL

(article 36 et règle 70 du PCT)

Référence du dossier du déposant ou du mandataire <b>4333/JPN</b>	<b>POUR SUITE A DONNER</b> voir la notification de transmission du rapport d'examen préliminaire international (formulaire PCT/IPEA/416)	
Demande internationale n° <b>PCT/FR99/01367</b>	Date du dépôt international (jour/mois/année) <b>09/06/1999</b>	Date de priorité (jour/mois/année) <b>12/06/1998</b>
Classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois classification nationale et CIB <b>C09K7/00</b>		
Déposant <b>INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE et al.</b>		

1. Le présent rapport d'examen préliminaire international, établi par l'administration chargée de l'examen préliminaire international, est transmis au déposant conformément à l'article 36.
2. Ce RAPPORT comprend 7 feuilles, y compris la présente feuille de couverture.
 

☒ Il est accompagné d'ANNEXES, c'est-à-dire de feuilles de la description, des revendications ou des dessins qui ont été modifiées et qui servent de base au présent rapport ou de feuilles contenant des rectifications faites auprès de l'administration chargée de l'examen préliminaire international (voir la règle 70.16 et l'instruction 607 des Instructions administratives du PCT).

Ces annexes comprennent 2 feuilles.

3. Le présent rapport contient des indications relatives aux points suivants:

- I ☒ Base du rapport
- II ☐ Priorité
- III ☒ Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle
- IV ☐ Absence d'unité de l'invention
- V ☒ Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration
- VI ☐ Certains documents cités
- VII ☐ Irrégularités dans la demande internationale
- VIII ☒ Observations relatives à la demande internationale

Date de présentation de la demande d'examen préliminaire internationale

**08/01/2000**

Date d'achèvement du présent rapport

**02.10.00**

Nom et adresse postale de l'administration chargée de l'examen préliminaire international:



Office européen des brevets  
 D-80298 Munich  
 Tél. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d  
 Fax: +49 89 2399 - 4465

Fonctionnaire autorisé

**Scheuer, S**

N° de téléphone +49 89 2399 8321



43001710

**RAPPORT D'EXAMEN  
PRELIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/FR99/01367

**I. Base du rapport**

1. Ce rapport a été rédigé sur la base des éléments ci-après *(les feuilles de remplacement qui ont été remises à l'office récepteur en réponse à une invitation faite conformément à l'article 14 sont considérées, dans le présent rapport, comme "initialement déposées" et ne sont pas jointes en annexe au rapport puisqu'elles ne contiennent pas de modifications.)* :

**Description, pages:**

1,3-13	version initiale			
2	reçue(s) le	23/06/2000	avec la lettre du	20/06/2000

**Revendications, N°:**

7-12	version initiale			
1-6	reçue(s) le	23/06/2000	avec la lettre du	20/06/2000

2. Les modifications ont entraîné l'annulation :

- ☐ de la description, pages :
- ☐ des revendications, n°s :
- ☐ des dessins, feuilles :

3. ☐ Le présent rapport a été formulé abstraction faite (de certaines) des modifications, qui ont été considérées comme allant au-delà de l'exposé de l'invention tel qu'il a été déposé, comme il est indiqué ci-après (règle 70.2(c)) :

4. Observations complémentaires, le cas échéant :

**III. Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle**

La question de savoir si l'objet de l'invention revendiquée semble être nouveau, impliquer une activité inventive (ne pas être évident) ou être susceptible d'application industrielle n'a pas été examinée pour ce qui concerne :

- ☐ l'ensemble de la demande internationale.
- ☒ les revendications n°s 11,12.



**RAPPORT D'EXAMEN  
PRELIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/FR99/01367

parce que :

- ☐ la demande internationale, ou les revendications n°s en question, se rapportent à l'objet suivant, à l'égard duquel l'administration chargée de l'examen préliminaire international n'est pas tenue effectuer un examen préliminaire international (*préciser*) :
- ☒ la description, les revendications ou les dessins (*en indiquer les éléments ci-dessous*), ou les revendications n°s 11,12 en question ne sont pas clairs, de sorte qu'il n'est pas possible de formuler une opinion valable (*préciser*) :  
**voir feuille séparée**
- ☐ les revendications, ou les revendications n°s en question, ne se fondent pas de façon adéquate sur la description, de sorte qu'il n'est pas possible de formuler une opinion valable.
- ☐ il n'a pas été établi de rapport de recherche internationale pour les revendications n°s en question.

**V. Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

1. Déclaration

Nouveauté	Oui : Revendications 2,10
	Non : Revendications 1,3-9
Activité inventive	Oui : Revendications 2,10
	Non : Revendications 1,3-9
Possibilité d'application industrielle	Oui : Revendications 1-10
	Non : Revendications

2. Citations et explications

**voir feuille séparée**

**VIII. Observations relatives à la demande internationale**

Les observations suivantes sont faites au sujet de la clarté des revendications, de la description et des dessins et de la question de savoir si les revendications se fondent entièrement sur la description :

**voir feuille séparée**



**Concernant le point III**

**Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle**

La portée de la revendication 11 et de la revendication dépendante 12, n'est pas claire car bien que le terme "incorpore" indique une étape de procédé, les caractéristiques techniques qui permettent un contrôle du pouvoir lubrifiant ne sont pas apparentes (Article 6 PCT).

De ce fait une opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle pour l'objet des revendications 11 et 12 n'est pas formulée.

**Concernant le point V**

**Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

Il est fait référence aux documents suivants:

D1: GB-A-922667

D2: US-A-4359393

D3: Database WPI-Abstract 90-130964 & SU-A-1493662

D4: Traduction de SU-A-1493662 (D3) (introduite par le Demandeur)

**1. Nouveauté:**

**D4** décrit un composé **amphiphile ionique et non-ionique** utilisé dans les fluides pour le forage et issu respectivement d'une part de la réaction d'huile de graines de cotonnier avec la diéthanolamine à 25°C pendant 10 minutes (Exemple 4) et d'autre part de la réaction d'huile de graines de cotonnier avec la monoéthanolamine à **des températures de réaction de 100°C et 120°C** pendant 10 minutes qui sont des conditions opératoires permettant l'obtention d'un composé ayant les propriétés recherchées "amphiphile non-ionique" (Tableau 1, Exemples comparatifs lignes 13-14). De plus des concentrations de l'ordre de 0.1-0.5% en poids en composé obtenu sont





décrites (tableaux 4 et 6, %GE).

Telle que formulée, la portée de la revendication 1 est beaucoup trop large et de ce fait l'objet de la présente application tel que revendiqué ne diffère pas de celui de D4.

D'où l'objet des **revendications 1 et 3-9 n'apparaît pas nouveau** au sens de l'Article 33(2) PCT.

Toutefois il apparaît, au vu du contenu du document D4, que l'objet des **revendications 2 et 10** revendiquant respectivement un groupe spécifique d'huiles végétales et un fluide à pH supérieur à 9, **est nouveau** au sens de l'Article 33(2) PCT.

Les documents D1 et D2 ne semblent pas pertinents, car il décrivent un composé obtenu par réaction d'acides gras avec un aminoalcool, et leur utilisation dans des fluides de coupe et d'usinage de métaux.

## 2. Activité Inventive:

Au vu de l'objection soulevée ci-dessus quant à l'absence de nouveauté, une formulation d'opinion quant à l'activité inventive des revendications 1, 3-9 apparaît superfétatoire (Art.33(3) PCT).

D4 est considéré comme l'état de la technique le plus proche.

En ce qui concerne l'appréciation de l'activité inventive pour les revendications restantes 2 et 10, le problème à résoudre par la présente application est de fournir des fluides de puits à base d'eau qui après vieillissement et à pH élevé garde un bon pouvoir lubrifiant.

La différence entre l'objet des revendications 2 et 10 et D4 réside dans la nature de l'huile végétale utilisée et dans un fluide de puits ayant un pH supérieur à 9.

La présente application montre que pour des compositions de fluides de puits à pH supérieur à 9 et en présence d'un composé amphiphile non-ionique le pouvoir de lubrification est amélioré (voir tableau page 12 ligne 15).



Le document D4 décrit principalement des composés amphiphiles ioniques et montre qu'à des températures  $\geq 100^{\circ}\text{C}$ , donc très vraisemblablement en présence de composés amphiphiles non-ioniques la stabilité des suspensions argileuses décroît.

Par conséquent l'incorporation d'un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'une huile végétale, telle que revendiquée dans la revendication 2, avec un aminoalcool dans des fluides de puits à pH supérieur à 9, de telle sorte à garder un bon pouvoir lubrifiant, ne s'impose pas à l'évidence à l'homme du métier.

L'objet des **revendications 2 et 10 apparaît inventif** au sens de l'Article 33(3) PCT.

### **3. Application industrielle:**

L'objet de la présente application tel que revendiqué (rev. 1-10) est susceptible d'application industrielle.

### **Concernant le point VIII**

#### **Observations relatives à la demande internationale**

1. Le terme "etc..." utilisé dans la description est vague et ne définit pas clairement l'étendue de la protection (Art.6 PCT).
2. L'unité pour la valeur de cisaillement YV (exemples 3-4) doit être exprimée selon le système SI (Règle 10.1 PCT).
3. Contrairement à ce qu'exige la règle 5.1 a) ii) PCT, la description n'indique pas l'état de la technique antérieure pertinent exposé dans le document D4 et ne cite pas ce document.



**RAPPORT D'EXAMEN**

Demande internationale n° PCT/FR99/01367

**PRELIMINAIRE INTERNATIONAL - FEUILLE SEPARÉE**

---



N 23.06.00

## REVENDICATIONS

5

1) Fluide de puits à base d'eau, caractérisé en ce qu'il comporte un composé lubrifiant comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale sur au moins un aminoalcool.

10

2) Fluide selon la revendication 1, caractérisé en ce que ladite huile végétale est choisie dans le groupe formé par l'huile de lin, de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, ou leur mélange.

15

3) Fluide selon l'une des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que ladite huile végétale est polymérisée et a une viscosité à 20°C comprise entre 5 et 60 Pa.s.

20

4) Fluide selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que ledit aminoalcool est la diéthanolamine.

25

5) Fluide selon l'une des revendication 1 à 4, caractérisé en ce que le composé lubrifiant est conditionné sous la forme d'un mélange comprenant au moins un solvant.

6) Fluide selon la revendication 5, caractérisé en ce que ledit solvant est un dérivé d'une huile végétale.





N° 23.06.00

en production. Pour ces opérations, le fluide de complétion peut être spécifique notamment à la roche réservoir et aux effluents produits. Les opérations de "workover" ou d'intervention consistent à travailler dans un puits producteur pour forer, reforer, nettoyer le puits, ou changer des  
5 équipements de puits.

Les fluides de puits doivent pouvoir avoir des caractéristiques ajustées en fonction des utilisations très variées, notamment leur viscosité, leur masse volumique ou leur capacité de contrôle du filtrat. Dans certains cas de puits très fortement déviés, par exemple des forages  
10 horizontaux, ou plus généralement des puits qui procurent des frottements importants sur les tubulaires descendus dans le puits, la capacité lubrifiante du fluide devient une caractéristique importante.

On utilise parfois des fluides à haut pH, c'est à dire supérieur à 9 et généralement supérieur à environ 10, par exemple les boues de forage à  
15 base de silicate telles celles décrites dans la publication SPE 37266 présentée à l'« International Symposium on Oilfield Chemistry, 18-21 February 1997, Houston TX ». Ces boues sont récemment utilisées notamment pour leur qualité d'inhibition du gonflement des argiles forées.

20

Ainsi, la présente invention concerne un fluide de puits à base d'eau qui comporte un composé lubrifiant comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale sur au moins un aminoalcool.

25

Toutes les huiles végétales peuvent convenir. L'huile végétale peut être choisie dans le groupe formé par l'huile de lin, de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, ou leur mélange.

Dans une variante, l'huile végétale peut être polymérisée et avoir après polymérisation une viscosité à 20°C comprise entre 5 et 60 Pa.s.

30

L'aminoalcool utilisé peut être la diéthanolamine.





## DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITE DE COOPERATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

<b>(51) Classification internationale des brevets <sup>6</sup> :</b> <b>C09K 7/00, 7/02, C10M 173/02</b>	<b>A1</b>	<b>(11) Numéro de publication internationale:</b> <b>WO 99/66006</b> <b>(43) Date de publication internationale:</b> 23 décembre 1999 (23.12.99)
<b>(21) Numéro de la demande internationale:</b> PCT/FR99/01367 <b>(22) Date de dépôt international:</b> 9 juin 1999 (09.06.99) <b>(30) Données relatives à la priorité:</b> 98/07969 12 juin 1998 (12.06.98) FR <b>(71) Déposants (pour tous les Etats désignés sauf US):</b> INSTITUT FRANÇAIS DU PETROLE [FR/FR]; 1 & 4, avenue de Bois Préau, F-92852 Rueil-Malmaison Cedex (FR). FINA RESEARCH [BE/BE]; Zone Industrielle C, B-7181 Seneffe (Felu) (BE). <b>(72) Inventeurs; et</b> <b>(75) Inventeurs/Déposants (US seulement):</b> ARGILLIER, Jean-François [FR/FR]; 4, square de l'Hippodrome, F-92210 Saint-Cloud (FR). DEMOULIN, André [BE/BE]; 1, rue de Pymont, B-5998 Beauvechain (BE). AUDIBERT-HAYET, Annie [FR/FR]; 10, place Blanche de Castille, F-78290 Croissy sur Seine (FR). JANSSEN, Michel [BE/BE]; 59, avenue de la Forêt, B-1970 Wezembeek-Oppeem (BE). <b>(74) Représentant commun:</b> INSTITUT FRANÇAIS DU PETROLE; 1 & 4, avenue de Bois Préau, F-92852 Rueil Malmaison Cedex (FR).		<b>(81) Etats désignés:</b> AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, brevet ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), brevet eurasién (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  <b>Publiée</b> <i>Avec rapport de recherche internationale.</i>
<b>(54) Title:</b> BOREHOLE FLUID CONTAINING A LUBRICATING COMPOSITION - METHOD FOR VERIFYING THE LUBRIFICATION OF A BOREHOLE FLUID - APPLICATION WITH RESPECT TO FLUIDS WITH A HIGH PH <b>(54) Titre:</b> FLUIDE DE PUIITS COMPORTANT UNE COMPOSITION LUBRIFIANTE - PROCÉDE POUR CONTROLER LA LUBRIFICATION D'UN FLUIDE DE PUIITS - APPLICATION AUX FLUIDES A HAUT PH		
<b>(57) Abstract</b> <p>The present invention relates to a borehole fluid comprising a lubricating compound containing at least one amphiphilic non-ionic compound obtained by reacting at least one vegetable oil or fatty acid as such or in a polymerised state on at least one amino alcohol. In one variant, the compound can be mixed with a solvent. The invention also relates to a method for verifying the lubrication power of a water-based fluid. The invention further relates to the application of said method to borehole fluids with a high pH.</p> <b>(57) Abrégé</b> <p>La présente invention concerne un fluide de puits qui comporte un composé lubrifiant comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale, ou un acide gras tel quel ou polymérisé, sur au moins un aminoalcool. Dans une variante, le composé peut être mélangé à un solvant. L'invention concerne également un procédé de contrôle du pouvoir lubrifiant d'un fluide à base d'eau. Application du procédé à un fluide de puits ayant un haut pH.</p>		

### UNIQUEMENT A TITRE D'INFORMATION

Codes utilisés pour identifier les Etats parties au PCT, sur les pages de couverture des brochures publiant des demandes internationales en vertu du PCT.

AL	Albanie	ES	Espagne	LS	Lesotho	SI	Slovénie
AM	Arménie	FI	Finlande	LT	Lituanie	SK	Slovaquie
AT	Autriche	FR	France	LU	Luxembourg	SN	Sénégal
AU	Australie	GA	Gabon	LV	Lettonie	SZ	Swaziland
AZ	Azerbaïdjan	GB	Royaume-Uni	MC	Monaco	TD	Tchad
BA	Bosnie-Herzégovine	GE	Géorgie	MD	République de Moldova	TG	Togo
BB	Barbade	GH	Ghana	MG	Madagascar	TJ	Tadjikistan
BE	Belgique	GN	Guinée	MK	Ex-République yougoslave de Macédoine	TM	Turkménistan
BF	Burkina Faso	GR	Grèce			TR	Turquie
BG	Bulgarie	HU	Hongrie	ML	Mali	TT	Trinité-et-Tobago
BJ	Bénin	IE	Irlande	MN	Mongolie	UA	Ukraine
BR	Brésil	IL	Israël	MR	Mauritanie	UG	Ouganda
BY	Bélarus	IS	Islande	MW	Malawi	US	Etats-Unis d'Amérique
CA	Canada	IT	Italie	MX	Mexique	UZ	Ouzbékistan
CF	République centrafricaine	JP	Japon	NE	Niger	VN	Viet Nam
CG	Congo	KE	Kenya	NL	Pays-Bas	YU	Yougoslavie
CH	Suisse	KG	Kirghizistan	NO	Norvège	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	République populaire démocratique de Corée	NZ	Nouvelle-Zélande		
CM	Cameroun			PL	Pologne		
CN	Chine	KR	République de Corée	PT	Portugal		
CU	Cuba	KZ	Kazakstan	RO	Roumanie		
CZ	République tchèque	LC	Sainte-Lucie	RU	Fédération de Russie		
DE	Allemagne	LI	Liechtenstein	SD	Soudan		
DK	Danemark	LK	Sri Lanka	SE	Suède		
EE	Estonie	LR	Libéria	SG	Singapour		

**FLUIDE DE PUITS COMPORTANT UNE COMPOSITION LUBRIFIANTE -  
PROCÉDE POUR CONTRÔLER LA LUBRIFICATION D'UN FLUIDE DE  
5 PUITS - APPLICATION AUX FLUIDES A HAUT PH**

La présente invention concerne les fluides utilisés pour le forage, le conditionnement de puits ou les interventions dans des puits. Plus particulièrement, l'invention décrit un fluide à base d'eau comportant un  
10 composé lubrifiant et un procédé pour contrôler le pouvoir lubrifiant de fluides à base d'eau placés dans des puits forés. Dans une application, les fluides de puits à base d'eau ont un pH supérieur à 9.

La méthode conventionnelle de forage de puits, pétroliers ou non,  
15 consiste à entraîner en rotation un outil à dents fixé à l'extrémité d'une colonne de tiges de forage, la colonne étant généralement entraînée en rotation par une installation de surface. Un fluide, appelé fluide ou boue de forage, est injecté au niveau de l'outil par l'espace intérieur des tiges. Les fonctions principales de ce fluide sont : de nettoyer l'outil et le puits  
20 en remontant les débris vers la surface, de stabiliser les parois du puits, d'inhiber les réactions des formations géologiques en contact avec le fluide, etc...

La présente invention ne concerne pas uniquement les fluides dits  
25 de forage, mais également les fluides dits de "complétion", ainsi que les fluides dits d'intervention ("workover"). La complétion est une opération qui poursuit l'opération de forage lorsque le puits atteint la formation productrice. La complétion consiste notamment à forer dans la roche réservoir, tester la formation, équiper le puits pour la production, mettre  
30 en production. Pour ces opérations, le fluide de complétion peut être spécifique notamment à la roche réservoir et aux effluents produits. Les

opérations de "workover" ou d'intervention consistent à travailler dans un puits producteur pour forer, reforer, nettoyer le puits, ou changer des équipements de puits.

Les fluides de puits doivent pouvoir avoir des caractéristiques  
5 ajustées en fonction des utilisations très variées, notamment leur viscosité, leur masse volumique ou leur capacité de contrôle du filtrat. Dans certains cas de puits très fortement déviés, par exemple des forages horizontaux, ou plus généralement des puits qui procurent des frottements importants sur les tubulaires descendus dans le puits, la  
10 capacité lubrifiante du fluide devient une caractéristique importante.

On utilise parfois des fluides à haut pH, c'est à dire supérieur à 9 et généralement supérieur à environ 10, par exemple les boues de forage à base de silicate telles celles décrites dans la publication SPE 37266 présentée à l'« International Symposium on Oilfield Chemistry, 18-21  
15 February 1997, Houston TX ». Ces boues sont récemment utilisées notamment pour leur qualité d'inhibition du gonflement des argiles forées.

Ainsi, la présente invention concerne un fluide de puits à base  
20 d'eau qui comporte un composé lubrifiant comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale ou un acide gras sur au moins un aminoalcool.

Toutes les huiles végétales ou acides gras végétaux peuvent convenir. L'huile végétale ou acide gras peut être choisi dans le groupe  
25 formé par l'huile de lin, de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, de colza ou leur mélange, ou d'un acide gras dérivé de ces huiles végétales.

Dans une variante, l'huile végétale ou acide gras peut être polymérisé et avoir après polymérisation une viscosité à 20°C comprise  
30 entre 5 et 60 Pa.s.

L' aminoalcool utilisé peut être la diéthanolamine.

Le composé lubrifiant peut être conditionné sous la forme d'un mélange comprenant un ou plusieurs solvants et éventuellement d'autres composés.

Le solvant du mélange peut être un dérivé d'une huile végétale.

5 Le mélange (composé lubrifiant et solvants) peut contenir entre 0 et 80% en masse de solvant et de préférence entre 20 et 40%.

Le fluide de puits peut comporter une concentration de 0,1 à 5% en poids du composé lubrifiant et de préférence comprise entre 0,5 à 2% en poids.

10 Le fluide selon l'invention peut avoir un pH supérieur à 9, et de préférence supérieur à 10.

L'invention concerne également un procédé pour contrôler le pouvoir lubrifiant d'un fluide de puits à base d'eau qui consiste à incorporer dans le fluide un composé lubrifiant selon la définition ci-dessus.

15 L'invention comprend une application du procédé ci-dessus à des fluides de puits à pH supérieur à 9 et de préférence supérieur à 10.

Bien que toutes les huiles végétales ou acides gras végétaux  
20 peuvent convenir, on utilisera de préférence des huiles fortement insaturées telles que l'huile de lin ou encore de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, ou leur mélange. Ces huiles végétales ou acides gras sont utilisés tels quels ou polymérisés. Les huiles végétales polymérisées ("stand oils") sont obtenues par traitement  
25 thermique des huiles végétales fortement insaturées citées plus haut, dans des conditions telles qu'il n'y a pas d'oxydation. L'huile ou acide gras de lin (de préférence raffiné) est généralement utilisé, mais il est possible d'employer de l'huile ou acide gras de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, ou leur mélange. Pour préparer le composé  
30 lubrifiant selon une variante de l'invention, on pourra utiliser une huile végétale ou un acide gras polymérisé ayant une viscosité comprise entre 5

et 60 Pa.s à 20°C. A titre d'exemple, le traitement thermique d'une huile de lin raffinée à une température de 290-300°C donne en 6 à 12 heures un produit d'une viscosité de 10 Pa.s à 25°C.

5 Les aminoalcools utilisés pour préparer les composés de l'invention sont des amines ou polyamines comportant une ou plusieurs fonctions alcool et éventuellement une ou plusieurs fonctions éthers.

Par exemple, les aminoalcools peuvent correspondre aux formules suivantes :

10 HO-CmH<sub>2m</sub>-NH<sub>2</sub>  
 HO-CmH<sub>2m</sub>-NH-CkH<sub>(2k+1)</sub>  
 (HO-CmH<sub>2m</sub>)<sub>2</sub>-NH  
 (HO-CmH<sub>2m</sub>)<sub>3</sub>-N  
 (HO-CmH<sub>2m</sub>)<sub>p</sub>-CH<sub>(3-p)</sub>-NH<sub>2</sub>  
 15 HO-(CmH<sub>2m</sub>-O)<sub>n</sub>-NH-CkH<sub>(2k+1)</sub>  
 HO-(CmH<sub>2m</sub>-O)<sub>n</sub>-CkH<sub>2k</sub>-NH<sub>2</sub>  
 HO-(CmH<sub>2m</sub>-O)<sub>n</sub>-NH-CkH<sub>2k</sub>-(O-CmH<sub>2m</sub>)<sub>n</sub>-OH ramifiés ou non  
 avec m=2 à 6; k=1 à 6; p=2 ou 3; n=2 à 20

En particulier, on peut citer:

20 la monoéthanolamine : OH - (CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> - NH<sub>2</sub>,  
 la monopropanolamine : OH - (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - NH<sub>2</sub>,  
 la monoisopropanolamine : CH<sub>3</sub> - CH (OH) - CH<sub>2</sub> - NH<sub>2</sub>,  
 le 2-amino-1-butanol : CH<sub>3</sub> - CH<sub>2</sub> - CH (NH<sub>2</sub>) - CH<sub>2</sub> - OH,  
 le 1-amino-2-butanol : CH<sub>3</sub> - CH<sub>2</sub> - CH(OH) - CH<sub>2</sub> - NH<sub>2</sub>,  
 25 la N-méthyl-éthanolamine : CH<sub>3</sub> - NH - (CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> - OH,  
 la N-butyl-éthanolamine : CH<sub>3</sub> - (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - NH - (CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> - OH,  
 la pentanolamine, l'hexanolamine, la cyclohexanolamine, les  
 polyalcanolamines ou encore les polyalcoxyglycolamines, de formule :  
 OH - (CH<sub>2</sub> - CH<sub>2</sub> - O)<sub>n</sub> - CH<sub>2</sub> - CH<sub>2</sub> - NH<sub>2</sub> (n entre 1 et 30)



et les polyols aminés tels que :

la diéthanolamine :  $(\text{OH} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2)_2 - \text{NH}_2$ ,

la diisopropanolamine :  $(\text{CH}_3 - \text{CH}(\text{OH}) - \text{CH}_2)_2 - \text{NH}_2$ , ou

le trihydroxyméthylaminométhane :  $((\text{HO})\text{H}_2\text{C} - )_3\text{C} - \text{NH}_2$ .

5

La synthèse des composés de l'invention peut être obtenue en faisant réagir un excès d'aminoalcool, de préférence la diéthanolamine sur une huile végétale ou un acide gras végétal tel quel, ou polymérisé de préférence obtenu à partir d'huile de lin.

10

De préférence, la réaction est conduite en l'absence de solvant, et généralement à une température supérieure à environ 100°C, et de préférence comprise entre 100 et 200°C.

Cependant, si la viscosité du milieu réactionnel est trop élevée, la  
15 réaction pourra se faire en présence d'un solvant.

On obtient en fin de réaction le composé lubrifiant inclus dans le fluide selon l'invention.

Ce composé peut être incorporé tel quel dans le fluide de puits aqueux à haut pH ou non, ou sous la forme d'un mélange comprenant un  
20 solvant ou plusieurs solvants et éventuellement d'autres composés.

Pour obtenir un mélange de viscosité acceptable compte tenu des applications envisagées, un solvant peut être additionné. Un certain nombre de solvants sont susceptibles d'être utilisés, en particulier des  
25 coupes aromatiques; toutefois on donnera la préférence à tous les solvants dérivés d'huiles naturelles, tels que des esters d'acides gras en C6 à C18 et d'alcools linéaires ou branchés en C2 à C18, afin d'obtenir une solution d'additifs biodégradable et non polluante pour l'environnement.

30

Dans leur utilisation comme additif lubrifiant à un fluide de puits ces composés sont ajoutés dans le fluide de puits à des concentrations allant en général de 0,1 à 5% en masse, de préférence de 0,5 à 2% en masse.

5 Il faut noter que les réglementations relatives à la protection de l'environnement imposent de plus en plus que les différents additifs utilisés dans la formulation des fluides de puits soient non toxiques et non polluants vis-à-vis de l'environnement.

Le fluide de puits de la présente invention qui comporte la  
10 composition lubrifiante a notamment l'avantage de répondre aux critères actuels relatifs à la protection de l'environnement.

De plus, la présente composition peut être utilisée avec tous les fluides de puits à base d'eau à haut pH, par exemple, les fluides à base de silicate alourdis ou non, certains fluides hautes pressions/hautes  
15 températures (HP/HT), etc...

Les pH élevés sont des conditions difficiles pour la stabilité des produits lubrifiants, en particulier ceux à base d'esters classiques qui s'hydrolysent à pH élevé et sous l'effet de la température.

L'invention sera mieux comprise et ses avantages apparaîtront  
20 plus nettement à lecture des exemples suivants, nullement limitatifs.

Le pouvoir lubrifiant d'une composition lubrifiante ajoutée à un fluide de puits selon l'invention est testé à l'aide d'un "Lubricity tester-Model 212" fabriqué par la société NL Baroid Petroleum Services  
25 (Instruction Manual Part No.211210001EA). Les tests ("Lubricity-surface to surface) sont effectués selon les procédures recommandées par la norme RP 13B de l'American Petroleum Institute (API), (100 psi (689 kPa) à 60 tours/minute). Pour comparer les capacités lubrifiantes des différentes compositions, on a relevé les lectures des graduations  
30 obtenues avec l'appareil de test ci-dessus décrit. Ces lectures correspondent à des valeurs relatives du couple de frottement. Plus ces

valeurs lues sont faibles, meilleur est le pouvoir lubrifiant de la composition testée.

Le principe des exemples ci-après est de mélanger, à un fluide de base, une certaine quantité d'une composition lubrifiante déterminée, le mélange étant ensuite testé dans l'appareillage. Les essais, sauf avis contraire, ont été réalisés à température ambiante (environ 25°C).

Une première composition lubrifiante, donnée en exemple, et ajoutée au fluide de puits de base a été dénommée ici NTL.

Le NTL est le résultat de la réaction de 52 kg d'huile de lin polymérisée d'une viscosité de 10 Pa.s et 28 kg de diéthanolamine, dans un réacteur de 100 litres et chauffé pendant une heure à 160°C. Sa viscosité est de l'ordre de 2700 mPa.s à 40°C.

Une seconde composition lubrifiante, dénommée XTL est le produit de la réaction de 52 kg d'huile de lin et de 28 kg de diéthanolamine dans le même réacteur que précédemment et sous les mêmes conditions.

#### Exemple 1 : Boue silicate avant vieillissement

Composition du fluide de base:

20	■ eau douce,	
	■ viscosifiant (xanthane)	5,2 g/l,
	■ réducteur de filtrat (Aquapac-Regular)	0,14 g/l
	■ réducteur de filtrat (Aquapac-LV)	2,51 g/l
	■ argile de charge	20 g/l
25	■ silicate de sodium	84,7 g/l
	■ chlorure de sodium	50 g/l
	■ baryte	93 g/l
	■ NaOH pour obtenir :	pH=11

Le xanthane utilisé pour tous les tests est de l'IDVIS commercialisé par la société Dowell Drilling Fluids. Les produits du type CMC AQUAPAC Regular et LV sont commercialisés par la société Aqualon.

Cet essai démontre le pouvoir de lubrification du lubrifiant NTL ajouté à un fluide de base à haut pH, en fonction de la concentration en poids.

Lubrifiant NTL (%)	Lecture du couple	
	(lbs.in)	N.m
0	42	4,75
0,5	25	2,8
1	23	2,6
1,5	21	2,4
2	17	1,9
3	17	1,9
4	17	1,9
5	17	1,9

On observe une diminution de la valeur du couple avec l'augmentation de la concentration en lubrifiant. Les résultats montrent les bonnes performances du système NTL sur cette formulation à pH élevé. Une concentration en additif lubrifiant de l'ordre de 2% est ici optimale.

#### Exemple 2: Boue silicate après vieillissement

On utilise la formulation du fluide de base précédent, additionnée de 2% de NTL à laquelle on fait subir un vieillissement dans une cellule de test dite « Hot Rolling » à 80°C pendant 16 heures, puis retour à la température ambiante. Les résultats suivants montrent que le vieillissement en température ne dégrade pas les propriétés de lubrification de l'additif NTL dans une boue à haut pH.

	Lecture du couple	
	(lbs.in)	(N.m)
Avant vieillissement	17	1,9
Après vieillissement	18	2,03

Exemple 3: Influence du lubrifiant sur les propriétés rhéologiques et de filtration de la boue

- 5 Dans ce qui suit, sont indiquées les propriétés rhéologiques de la boue (exprimées en VA viscosité apparente en centipoise (cP), VP viscosité plastique en centipoise (cP), YV est la valeur seuil de cisaillement (Yield Value) en lb/100ft<sup>2</sup> et gel 0 et gel 10 (ces mesures sont conformes au standard API RP 13B1 qui donne les correspondances des unités SI dans
- 10 l'Appendice I), avec et sans NTL, avant (AV) et après vieillissement (AP) de 16h à 80°C, ainsi que les propriétés de filtration exprimées par la quantité de filtrat (en cm<sup>3</sup>) corrigé obtenu après 30 minutes de filtration.

La formulation du fluide de base est la même que celle de la boue silicate

15 de l'exemple 1.

	sans NTL (AV)	avec 2% NTL (AV)	sans NTL (AP)	avec 2% NTL (AP)
VA	34	41	32	43
VP	11	20	17	22
YV	46	42	30	42
Gel 0/Gel 10	11/15	5/8	8/10	8/15
Filtrat (ml)	2,6	2,0	4,6	3,9

Ces résultats mettent en évidence que l'addition du pourcentage optimisé de NTL ne modifie pas significativement les propriétés rhéologiques et de filtration de la boue, que ce soit avant ou après vieillissement.

Exemple 4: Dilution de NTL par un solvant

Différents composés lubrifiants ont été testés (L1, L2, L3, L4, L5, L6), tous représentatifs de la présente invention. Les pourcentages sont exprimés en poids. Les viscosités mesurées à 40°C sont indiquées dans le tableau ci-dessous.

Mélanges	Viscosité (mPa.s)
L1: NTL-100%	2670
L2: NTL-80% + Oléate de méthyle-20%	790
L3: NTL-70% + Oléate de méthyle-30%	410
L4: NTL-80% + 2-butyle C12-C14-20%	710
L5: NTL-70% + 2-butyle C12-C14-30%	385
L6: NTL-70% + 2-butyle C12-C14-30% + 2-octanol (5% par rapport au 2-butyle C12-C14)	350

Les performances de lubrification et les caractéristiques des différents mélanges sont indiquées ci-dessous. Les mélanges ont été ajoutés à 1 ou 2% en poids dans la formulation de boue silicate de l'exemple 1.

10 Avant vieillissement

	concentration	Lecture de couple		VA	VP	YV
	%	(lbs.in)	(N.m)	mPa.s	mPa.s	lbs/100ft <sup>2</sup>
L1	2	17	1,9	41	20	42
L2	2	18	2,03	42	19	46
L3	1	24	2,7	34	13	42
L4	1	24	2,7	31	14	34
L4	2	18	2,03	33	15	36
L5	2	20	2,3	40	19	42
L6	2	18	2,03	39	18	42

Après vieillissement 16h à 80°C

	concentration	Lecture couple		VA	VP	YV
	%	(lbs.in)	(N.m)	mPa.s	mPa.s	lbs/100ft <sup>2</sup>
L1	2	18	2,03	43	22	42
L4	2	19	2,15	34	15	38
L6	2	18	-	39	18	42

Ces résultats montrent les très bonnes performances des systèmes étudiés en terme de lubrification. L'intérêt principal d'utiliser un diluant est de diminuer la viscosité de l'additif NTL ce qui facilite son incorporation dans le fluide aqueux.

Exemple 5: Boue silicate et composé XTL:

On utilise la formulation de boue silicate de l'exemple 1, avant vieillissement et après un vieillissement tel que décrit dans l'exemple 2.

10 Avant vieillissement:

Lubrifiant XTL (%)	Lecture du couple	
	(lbs.in)	N.m
0	42	4,75
0,5	26	2,9
1	24	2,7
1,5	22	2,5
2	22	2,5
3	22	2,5

Après vieillissement:

Lubrifiant XTL (%)	Lecture du couple	
	(lbs.in)	N.m
2	22	2,5

Ces résultats montrent que le composé lubrifiant XTL permet de diminuer les frottements de façon notable. Ses caractéristiques ne sont pas altérées après vieillissement.

Exemple 6: Boue bentonitique à l'eau de mer

composition du fluide de base :

- eau de mer,
- Bentonite 30 g/l
- 5 • viscosifiant (xanthane) 2 g/l
- réducteur de filtrat (Aquapac-LV) 1 g/l
- dispersant 3 g/l
- Baryte, telle que la masse volumique SG = 1,2 kg/l

Le dispersant utilisé est du polyacrylate FP30S commercialisé par la  
 10 société COATEX (France) .

Le pH de la formulation est ajusté à la soude NaOH, tel que pH=9 ou  
 pH=12.

Dans cet essai, sont indiqués les résultats du pouvoir de lubrification du  
 15 fluide à haut pH, en fonction de la concentration en lubrifiant NTL ajouté.

Lubrifiant NTL	Lecture du couple			
	pH 9		pH 12	
(%)	(lbs.in)	N.m	(lbs.in)	N.m
0	36	4,07	36	4,07
0,5	34	3,84	32	3,62
1	31	3,5	21	2,37
2	31	3,5	18	2,04
3	25	2,8	18	2,04
4	21	2,37	18	2,04
5	19	2,15	16	1,81

Ces résultats montrent les très bonnes performances de lubrification de  
 NTL, notamment à pH élevé.



Exemple 7: Boue au formiate de césium

composition du fluide de base:

- eau de mer
- viscosifiant (xanthane) 2 g/l
- 5 • réducteur de filtrat 2 g/l
- argile de charge 10 g/l
- KCl 50 g/l
- CsCOOH, H<sub>2</sub>O (formiate de césium hydraté):  
300 g/l tel que la masse volumique SG = 1.2 kg/l

10

Le pH de la formulation est ajusté à la soude NaOH, tel que le pH = 9 ou pH=12

Dans cet essai sont indiqués les résultats de lubrification en fonction de la concentration en lubrifiant NTL ajouté.

Lubrifiant NTL	Lecture du couple			
	pH 9		pH 12	
(%)	(lbs.in)	N.m	(lbs.in)	N.m
0	36	4,07	40	4,52
0,5	16	1,81	18	2,04
1	4	0,45	6	0,68
2	2	0,23	2	0,23
3	2	0,23	2	0,23

15

Ces mesures montrent les très bonnes performances de lubrification de NTL dans ce type de fluide à très haut pH.

## REVENDEICATIONS

5

1) Fluide de puits à base d'eau, caractérisé en ce qu'il comporte un composé lubrifiant comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale ou un acide gras sur au moins un aminoalcool.

10

2) Fluide selon la revendication 1, caractérisé en ce que ladite huile végétale ou acide gras est choisi dans le groupe formé par l'huile de lin, de carthame, de pépins de raisins, de bois de chine, de tournesol, de colza ou leur mélange, ou d'un acide gras dérivé de ces huiles végétales.

15

3) Fluide selon l'une des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que ladite huile végétale est polymérisée et a une viscosité à 20°C comprise entre 5 et 60 Pa.s.

20

4) Fluide selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que ledit aminoalcool est la diéthanolamine.

25

5) Fluide selon l'une des revendication 1 à 4, caractérisé en ce que le composé lubrifiant est conditionné sous la forme d'un mélange comprenant au moins un solvant et éventuellement d'autres composés.

30

6) Fluide selon la revendication 5, caractérisé en ce que ledit solvant est un dérivé d'une huile végétale.

- 7) Fluide selon l'une des revendications 5 et 6, caractérisé en ce que ledit mélange contient entre 0 et 80% en masse de solvant et de préférence entre 20 et 40%.
- 5 8) Fluide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il comporte une concentration de 0,1 à 5% en poids dudit composé lubrifiant.
- 10 9) Fluide selon la revendication 8, caractérisé en ce que ladite concentration est comprise entre 0,5 à 2% en poids.
- 10) Fluide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que son pH est supérieur à 9, et de préférence supérieur à 10.
- 15 11) Procédé pour contrôler le pouvoir lubrifiant d'un fluide de puits à base d'eau, caractérisé en ce que l'on incorpore audit fluide un composé lubrifiant selon l'une des revendications 1 à 9.
- 20 12) Application du procédé selon la revendication 11 à des fluides de puits à pH supérieur à 9 et de préférence supérieur à 10.



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/FR 99/01367

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C09K7/00 C09K7/02 C10M173/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C09K C10M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 9017 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D23, AN 90-130964 XP002094473 & SU 1 493 662 A (AS UZB CHEM INST) , 15 July 1989 see abstract ---	1,4
Y	US 4 359 393 A (R.J.STURWOLD) 16 November 1982 see column 2, line 8 - column 3, line 25 ---	1,3-5
Y	GB 922 667 A (MASTER CHEMICAL CORP.) 3 April 1963 see page 2, line 4 - line 19 see page 2, line 65 - page 3, line 3 ---	1,3-5
	-/--	



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 August 1999

Date of mailing of the international search report

12/08/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Boulon, A

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/FR 99/01367

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>US 3 761 410 A (T.C.MONDSHINE)  25 September 1973  see column 1, line 13 - line 23  see column 3, line 38 - column 4, line 3  see column 4, line 66 - column 5, line 9  see column 5, line 49 - line 54  -----</p>	1,2

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/FR 99/01367

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4359393 A	16-11-1982	CA 1162529 A	21-02-1984
GB 922667 A		NL 133191 C	
		US 3186946 A	01-06-1965
US 3761410 A	25-09-1973	NONE	



1

2

3

4



# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

De de Internationale No  
PCT/FR 99/01367

**A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE**  
CIB 6 C09K7/00 C09K7/02 C10M173/02

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

**B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE**

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

CIB 6 C09K C10M

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)

**C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS**

Catégorie	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 9017 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D23, AN 90-130964 XP002094473 & SU 1 493 662 A (AS UZB CHEM INST) , 15 juillet 1989 voir abrégé	1,4
Y	US 4 359 393 A (R.J.STURWOLD) 16 novembre 1982 voir colonne 2, ligne 8 - colonne 3, ligne 25	1,3-5
Y	GB 922 667 A (MASTER CHEMICAL CORP.) 3 avril 1963 voir page 2, ligne 4 - ligne 19 voir page 2, ligne 65 - page 3, ligne 3	1,3-5
	-/--	

☒ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

**\* Catégories spéciales de documents cités:**

- "A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- "L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
- "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- "P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

- "T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention
- "X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément
- "Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier
- "&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

4 août 1999

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

12/08/1999

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale  
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tél. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Boulon, A

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Di .de Internationale No

PCT/FR 99/01367

## C.(suite) DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	<p>US 3 761 410 A (T.C.MONDSHINE)  25 septembre 1973  voir colonne 1, ligne 13 - ligne 23  voir colonne 3, ligne 38 - colonne 4,  ligne 3  voir colonne 4, ligne 66 - colonne 5,  ligne 9  voir colonne 5, ligne 49 - ligne 54  -----</p>	1,2

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

De de Internationale No

PCT/FR 99/01367

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 4359393 A	16-11-1982	CA 1162529 A	21-02-1984
GB 922667 A		NL 133191 C	
		US 3186946 A	01-06-1965
US 3761410 A	25-09-1973	AUCUN	



①⑨ RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
PARIS

①⑪ N° de publication :

2 768 637

(à n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction)

②① N° d'enregistrement national :

97 12050

⑤① Int Cl<sup>6</sup> : B 01 F 17/52, C 10 L 1/22, 3/00, F 16 L 55/24

9

①②

## DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②② Date de dépôt : 25.09.97.

③③ Priorité :

⑦① Demandeur(s) : INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE  
— FR.

④③ Date de mise à la disposition du public de la  
demande : 26.03.99 Bulletin 99/12.

⑤⑥ Liste des documents cités dans le rapport de  
recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du  
présent fascicule*

⑥③ Références à d'autres documents nationaux  
apparentés :

⑦② Inventeur(s) : SINQUIN ANNE, DURAND JEAN  
PIERRE, VELLY MARIE et HILLION GERARD.

⑦③ Titulaire(s) :

⑦④ Mandataire(s) :

⑤④ METHODE POUR TRANSPORTER DES HYDRATES EN SUSPENSION DANS DES EFFLUENTS DE  
PRODUCTION.

⑤⑦ L'invention décrit un procédé pour transporter des hy-  
drates en suspension au sein d'un fluide comprenant de  
l'eau, du gaz et un hydrocarbure liquide par l'addition d'un  
composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au  
moins une huile végétale polymérisée avec un aminoalcool.  
Le composé amphiphile non-ionique est introduit en général  
à une concentration de 0, 1 à 5% en masse par rapport à  
l'eau.

FR 2 768 637 - A1



L'invention concerne un procédé pour transporter des hydrates de gaz naturel, de gaz de pétrole ou d'autres gaz en suspension au sein d'un fluide comprenant de l'eau, un desdits gaz et un hydrocarbure liquide.

- 5 Elle concerne plus particulièrement un procédé dans lequel on met en jeu un composé amphiphile non ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale polymérisée et d'au moins un aminoalcool.

- 10 Les gaz qui forment des hydrates peuvent notamment comprendre au moins un hydrocarbure choisi parmi le méthane, l'éthane, l'éthylène, le propane, le propène, le n-butane et l'iso-butane, et éventuellement de l'H<sub>2</sub>S et/ou du CO<sub>2</sub>.

- 15 Ces hydrates se forment lorsque l'eau se trouve en présence de gaz, soit à l'état libre, soit à l'état dissout dans une phase liquide, telle qu'un hydrocarbure liquide, et lorsque la température atteinte par le mélange notamment d'eau, de gaz et éventuellement d'hydrocarbures liquides, tels que de l'huile, devient inférieure à la température thermodynamique de formation des hydrates, cette température étant donnée pour une composition des gaz connue et lorsque leur pression est fixée.

- 20 La formation d'hydrates peut être redoutée, notamment dans l'industrie pétrolière et gazière, pour lesquelles les conditions de formation d'hydrates peuvent être réunies. En effet, pour diminuer le coût de production du pétrole brut et du gaz, tant au point de vue des investissements qu'au point de vue de l'exploitation, une voie envisagée, notamment en production en mer, est de réduire, voire de supprimer, les  
25 tarissements appliqués au brut ou au gaz à transporter du gisement à la côte et notamment de laisser toute ou partie de l'eau dans le fluide à transporter. Ces traitements en mer s'effectuent en général sur une plate-forme située en surface à proximité du gisement, de manière que l'effluent, initialement chaud, puisse être traité avant que les conditions thermodynamiques de formation des hydrates ne soient  
30 atteintes du fait du refroidissement de l'effluent avec l'eau de mer.

Cependant, comme cela arrive pratiquement lorsque les conditions thermodynamiques requises pour former des hydrates sont réunies, l'agglomération des hydrates

entraîne le blocage des conduites de transport par création de bouchons qui empêchent tout passage de pétrole brut ou de gaz.

5 La formation de bouchons d'hydrates peut entraîner un arrêt de la production et provoquer ainsi des pertes financières importantes. De plus, la remise en service de l'installation, surtout s'il s'agit de production ou de transport en mer, peut être longue, car la décomposition des hydrates formés est très difficile à réaliser. En effet, lorsque la production d'un gisement sous-marin de gaz naturel ou de pétrole et de gaz comportant de l'eau atteint la surface du sol marin et est ensuite transportée au fond  
10 de la mer, il arrive, par l'abaissement de la température de l'effluent produit, que les conditions thermodynamiques soient réunies pour que des hydrates se forment, s'agglomèrent et bloquent les conduites de transfert. La température au fond de la mer peut être, par exemple, de 3 ou 4°C.

15 Des conditions favorables à la formation d'hydrates peuvent aussi être réunies de la même façon à terre, pour des conduites pas (ou pas assez profondément) enfouies dans le sol terrestre, lorsque par exemple la température de l'air ambiant est froide.

Pour éviter ces inconvénients, on a cherché, dans l'art antérieur, à utiliser des  
20 produits qui, ajoutés au fluide, pourraient agir comme inhibiteurs en abaissant la température thermodynamique de formation des hydrates. Ce sont notamment des alcools, tels que le méthanol, ou des glycols, tels que le mono-, le di- ou le tri-éthylèneglycol. Cette solution est très onéreuse car la quantité d'inhibiteurs à ajouter peut atteindre 10 à 40% de la teneur en eau et ces inhibiteurs sont difficiles à  
25 récupérer complètement.

On a également préconisé l'isolation des conduites de transport, de manière à éviter que la température du fluide transporté n'atteigne la température de formation des hydrates dans les conditions opératoires. Une telle technique est, elle aussi, très  
30 coûteuse.

Par ailleurs, divers composés tensioactifs non-ioniques ou anioniques ont été testés pour leur effet de retardement de la formation d'hydrates au sein d'un fluide renfermant un gaz, notamment un hydrocarbure, et de l'eau. On peut citer par

exemple l'article de Kuliev et al: « Surfactants Studied as Hydrate Formation Inhibitors . » Gazovoe Delo n° 10 1972, 17-19, rapporté dans Chemical Abstracts 80, 1974, 98122r.

5 On a encore décrit l'utilisation d'additifs capables de modifier le mécanisme de formation des hydrates, puisque, au lieu de s'agglomérer rapidement les uns aux autres et de former des bouchons, les hydrates formés se dispersent dans le fluide sans s'agglomérer et sans obstruer les conduites. On peut citer à cet égard la demande de brevet EP-A-323 774 au nom de la demanderesse, qui décrit l'utilisation de  
10 composés amphiphiles non-ioniques choisis parmi les esters de polyols et d'acides carboxyliques, substitués ou non-substitués, et les composés à fonction imide ; la demande de brevet EP-A-323 775, également au nom de la demanderesse, qui décrit notamment l'utilisation de composés appartenant à la famille des diéthanolamides d'acides gras ou de dérivés d'acides gras ; le brevet US-A-4 856 593 qui décrit  
15 l'utilisation de composés tensioactifs tels que des phosphonates organiques, des esters phosphates, des acides phosphoniques, leurs sels et leurs esters, des polyphosphates inorganiques et leurs esters ainsi que des polyacrylamides et des polyacrylates ; et la demande de brevet EP-A-457 375, qui décrit l'utilisation de composés tensioactifs anioniques, tels que les acides alkylarylsulfoniques et leurs sels de métaux alcalins.

20

Des composés amphiphiles obtenus par réaction d'au moins un dérivé succinique choisi dans le groupe formé par les acides et les anhydrides polyalkényl succiniques sur au moins un monoéther de polyéthylène glycol ont également été proposés pour réduire la tendance à l'agglomération des hydrates de gaz naturel, de gaz de pétrole  
25 ou d'autres gaz (demande de brevet EP-A-582507).

On a maintenant découvert que, pour transporter des hydrates en suspension au sein d'un fluide comprenant de l'eau, du gaz et un hydrocarbure liquide, il était particulièrement avantageux d'utiliser comme additif un ou plusieurs composés  
30 amphiphiles non ioniques obtenus par réaction d'au moins une huile végétale polymérisée avec au moins un aminoalcool.

Ainsi, l'invention propose un procédé pour transporter des hydrates en suspension au sein d'un fluide comprenant au moins de l'eau, un gaz et un hydrocarbure liquide



dans des conditions où des hydrates peuvent se former à partir d'eau et de gaz, caractérisé en ce qu'on incorpore audit fluide un additif comprenant au moins un composé amphiphile non ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale polymérisée avec au moins un aminoalcool.

5

Les huiles végétales polymérisées utilisées pour préparer les composés décrits dans l'invention ont habituellement une viscosité comprise entre 5 et 60 Pa.s. Ces huiles végétales polymérisées sont largement décrites dans l'art antérieur et sont par exemple obtenues par traitement thermique d'huiles fortement insaturées telles que l'huile de lin ou encore de carthame, de pépin de raisin, de bois de chine ou de tournesol.

10

Les aminoalcools utilisés pour préparer les composés de l'invention sont par exemple :

15

la monoéthanolamine :  $\text{OH} - (\text{CH}_2)_2 - \text{NH}_2$ ,

la monopropanolamine :  $\text{OH} - (\text{CH}_2)_3 - \text{NH}_2$ ,

la monoisopropanolamine :  $\text{CH}_3 - \text{CH}(\text{OH}) - \text{CH}_2 - \text{NH}_2$ ,

le 2-amino-1-butanol :  $\text{CH}_3 - \text{CH}_2 - \text{CH}(\text{NH}_2) - \text{CH}_2 - \text{OH}$ ,

20

le 1-amino-2-butanol :  $\text{CH}_3 - \text{CH}_2 - \text{CH}(\text{OH}) - \text{CH}_2 - \text{NH}_2$ ,

la N-méthyl-éthanolamine :  $\text{CH}_2 - \text{NH} - (\text{CH}_2)_2 - \text{OH}$ ,

la N-butyl-éthanolamine :  $\text{CH}_2 - (\text{CH}_2)_3 - \text{NH} - (\text{CH}_2)_2 - \text{OH}$ ,

la pentanolamine, l'hexanolamine, la cyclohexanolamine, les polyalcanolamines ou encore les polyalcoxyglycolamines, de formule :

25

$\text{OH} - (\text{CH}_2 - \text{CH}_2 \text{O})_n - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{NH}_2$

et les polyols aminés tels que :

la diéthanolamine :  $(\text{OH} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2)_2 - \text{NH}$ ,

30

la diisopropanolamine :  $(\text{CH}_2 - \text{CH}(\text{OH}) - \text{CH}_2)_2 - \text{NH}$ , ou

le trihydroxyméthylaminométhane :  $((\text{HO})\text{H}_2\text{C} -)_3\text{C} - \text{NH}_2$ .

La synthèse des composés de l'invention peut être obtenue en faisant réagir un excès d'aminoalcool, de préférence la diéthanolamine sur une huile végétale polymérisée de préférence obtenue à partir d'huile de lin.

- 5 La réaction est en général conduite en l'absence de solvant à une température comprise par exemple entre 100 et 200°C.

En fin de réaction, pour obtenir un mélange pompable, un solvant est additionné. Un certain nombre de solvants sont susceptibles d'être utilisés en particulier des  
10 coupes aromatiques, toutefois on donnera la préférence à tous les solvants dérivés d'huiles végétales afin d'obtenir une solution d'additifs biodégradable et non polluante pour l'environnement.

- 15 La teneur en solvant dans le mélange final sera comprise entre 20 et 80% en masse et de préférence entre 30 et 70% en masse.

Dans leur utilisation comme additifs pour réduire la tendance à l'agglomération des hydrates, ces composés sont ajoutés dans le fluide à traiter à des concentrations allant en général de 0,1 à 5% en masse, de préférence de 0,2 à 2% en masse, par rapport à  
20 l'eau.

- Pour tester l'efficacité des produits utilisés dans le procédé de l'invention, on a simulé le transport de fluides formant des hydrates, tels que des effluents pétroliers et on a procédé à des essais de formation d'hydrates à partir de gaz, de condensat et  
25 d'eau, à l'aide de l'appareillage décrit ci-après.

L'appareillage comporte une boucle de 10 mètres constituée de tubes de diamètre intérieur égal à 7,7 mm ; un réacteur de 2 litres comprenant une entrée et une sortie pour le gaz, une aspiration et un refoulement pour le mélange : condensat, eau et  
30 additif initialement introduit. Le réacteur permet de mettre la boucle sous pression.

Des tubes de diamètre analogue à ceux de la boucle assurent la circulation des fluides de la boucle au réacteur, et inversement, par l'intermédiaire d'une pompe à

engrenages placée entre les deux. Une cellule saphir intégrée dans le circuit permet une visualisation du liquide en circulation, et donc des hydrates, s'ils se sont formés.

5 Pour déterminer l'efficacité des additifs selon l'invention, on introduit les fluides (eau, huile, additif) dans le réacteur ; l'installation est ensuite portée sous une pression de 7 MPa. L'homogénéisation des liquides est assurée par leur circulation dans la  
10 boucle et le réacteur, puis uniquement dans la boucle. En suivant les variations de perte de charge et de débit, on impose une rapide diminution de la température-, de 17°C à 4°C (température inférieure à la température de formation des hydrates), celle-ci est ensuite maintenue à cette valeur.

La durée des tests peut varier de quelques minutes à plusieurs heures : un additif performant permet de maintenir la circulation de la suspension d'hydrates avec une  
15 perte de charge et un débit stable.

Les exemples suivants illustrent l'invention mais ne doivent en aucune manière être considérés comme limitatifs. L'exemple 3 est donné à titre comparatif.

### 20 EXEMPLE 1

Dans un réacteur de 100 litres on introduit 52 kg d'huile de lin polymérisée d'une viscosité de 10 Pa.s et 28 kg de diéthanolamine. On chauffe pendant une heure à 160°C. Après refroidissement le produit de la réaction est dilué à 50% en masse dans  
25 une coupe hydrocarbonée ayant un point initial de distillation de 181°C et un point final de 212°C.

### 30 EXEMPLE 2

Dans l'exemple 1, toute choses étant égales par ailleurs, le produit de la réaction est dilué à 50% en masse dans un ester méthylique de ricin.

### EXEMPLE 3 (comparatif)

Dans cet exemple, on opère avec un fluide composé en volume de 10% d'eau et de 90% de condensat.

5

La composition pondérale du condensat est :

pour les molécules ayant moins de 11 atomes de carbone : 20% de paraffines et d'isoparaffines, 48% de naphtènes, 10% d'aromatiques ; et

10 pour les molécules ayant au moins 11 atomes de carbone : 22% d'un mélange de paraffines, d'isoparaffines, de naphtènes et d'aromatiques.

Le gaz utilisé comprend en volume 98% de méthane et 2% d'éthane. L'expérimentation est conduite sous une pression de 7 MPa, maintenue constante par apport de gaz. Dans ces conditions, on observe la formation d'un bouchon dans le  
15 serpent, quelques minutes après le début de la formation des hydrates (à une température d'environ 10,8°C) : les hydrates forment un bloc et la circulation du fluide devient impossible.

20

### EXEMPLE 4

Dans cet exemple, on opère comme dans l'exemple 3 comparatif, avec le même fluide, le même gaz, et à la même pression, mais on ajoute au fluide en circulation 1% en masse par rapport à l'eau, du produit fabriqué dans l'exemple 1. Dans ces  
25 conditions, on observe une augmentation de la perte de charge lors de la formation des hydrates (à une température d'environ 10°C), suivie de sa diminution et de sa stabilisation pendant plus de 24 heures à une température de 4°C. Une descente en température à 0°C n'affecte pas la circulation de la suspension, les hydrates restant dispersés dans les fluides.

30

**EXEMPLE 5**

Toutes choses étant égales par ailleurs, on répète l'exemple 4 en utilisant 1% en masse par rapport à l'eau du produit préparé comme décrit dans l'exemple 2. Dans  
5 ces conditions on observe que la circulation du fluide est maintenue pendant plus de 4 heures à 4°C.

REVENDICATIONS

1. Procédé pour transporter des hydrates en suspension au sein d'un fluide comprenant de l'eau, un gaz et un hydrocarbure liquide, dans des conditions où des  
5 hydrates peuvent se former à partir d'eau et du gaz, caractérisé en ce qu'on incorpore au dit fluide un additif comprenant au moins un composé amphiphile non-ionique obtenu par réaction d'au moins une huile végétale polymérisée sur au moins un aminoalcool.
- 10 2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que ladite huile végétale polymérisée est une huile de lin.
3. Procédé selon l'une des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que ladite huile de lin polymérisée à une viscosité à 20°C comprise entre 5 et 60 Pa.s.
- 15 4. Procédé selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que l' aminoalcool est la diéthanolamine.
5. Procédé selon l'une des revendication 1 à 4 caractérisé en ce que l'additif est  
20 conditionné dans un solvant consistant en une coupe aromatique.
6. Procédé selon l'une des revendication 1 à 4 caractérisé en ce que l'additif est conditionné dans un solvant dérivé d'une huile végétale.
- 25 7. Procédé selon l'une des revendication 1 à 6 caractérisé en ce que le solvant de l'additif est un ester méthylique de ricin.
8. Procédé selon l'une des revendications 5 à 7 caractérisé en ce que le solvant est ajouté de façon à ce que le mélange final contienne entre 20 et 80% et de  
30 préférence entre 30 et 70% en masse de solvant.
9. Procédé selon l'une des revendications 1 à 8 caractérisé en ce que ledit composé amphiphile non-ionique est incorporé audit fluide à une concentration de 0,1 à 5% en masse par rapport à l'eau présente.

10. Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce que ladite concentration est de 0,2 à 2% en masse par rapport à l'eau présente.
- 5 11. Procédé selon l'une des revendications 1 à 10, caractérisé en ce que, dans ledit fluide, ledit gaz comprend au moins un hydrocarbure choisi parmi le méthane, l'éthane, l'éthylène, le propane, le propène, le n-butane, l'isobutane, et éventuellement de l'H<sub>2</sub>S et/ou du CO<sub>2</sub>.
- 10 12. Procédé selon l'une des revendications 1 à 11 caractérisé en ce que ledit fluide comprend du gaz naturel.
13. Procédé selon l'une des revendication 1 à 12 , caractérisé en ce que ledit fluide comprend du gaz de pétrole et au moins un hydrocarbure liquide.

REPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL

de la

PROPRIETE INDUSTRIELLE

RAPPORT DE RECHERCHE  
PRELIMINAIRE

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

2768637

N° d'enregistrement  
national

FA 551460

FR 9712050

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		Revendications concernées de la demande examinée
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	
D,X	EP 0 323 775 A (I.F.P.) 12 juillet 1989 * page 3 - page 5; exemple 10 * -----	1,4,9-13
		DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (InLCL.6)
		E21B F17D F15D C10L
Date d'achèvement de la recherche		Examineur
12 juin 1998		De La Morinerie, B
<p>CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES</p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : pertinent à l'encontre d'au moins une revendication ou arrière-plan technologique général O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons &amp; : membre de la même famille, document correspondant</p>		

1

EPO FORM 150 03.82 (P04C13)